

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-163063

(43)Date of publication of application : 10.06.1994

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 04-214481

(71)Applicant : INST OF GAS TECHNOL

(22)Date of filing : 02.07.1992

(72)Inventor : MARIANOWSKI LEONARD G
SCHORA FRANK C
PETRI RANDY J
LAWSON MARK G

(30)Priority

Priority number : 91 724422

Priority date : 02.07.1991

Priority country : US

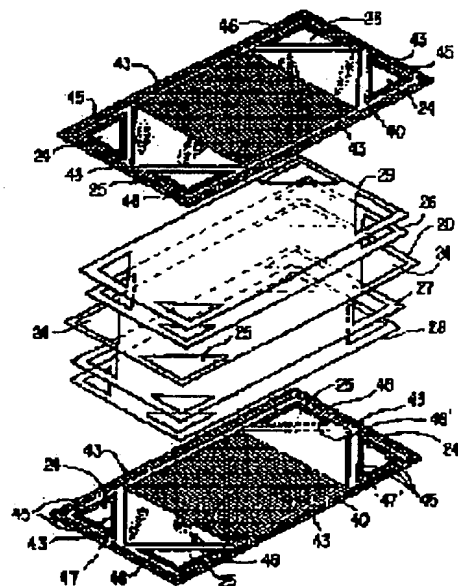
(54) FUEL CELL STACK FITTED WITH PERFECT INTERNAL MANIFOLD

(57)Abstract:

PURPOSE: To perfectly seal a gas passage from another gas passage, by forming on one surface, by the use of a press, a whole peripheral part and a manifold seal structure having a metallic upright seal structure.

CONSTITUTION: A separator plate 40, electrodes 26, 27, current collecting bodies 28, 29, and an electrolyte extend as far as a cell circumferential part, and a wet seal is formed on both surfaces of the plate 40. The plate 40, the electrodes 26, 27, the current collecting bodies 28, 29, and the electrolyte tile 20 are each equipped with manifold holes 24 for fuel and manifold holes 25 for oxidant in corresponding positions. The oxidant manifold holes 25 are sealed by the oxidation manifold wet seals 45.

Meanwhile, the fuel manifold holes 24 are sealed by the fuel manifold wet seals 45, and these seals 45 cause a fuel stream to flow only into an anode chamber and to flow out of the anode chamber. These seals 45 form a twofold wet seal.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

09.10.1997

[Date of sending the examiner's decision]

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-163063

(43)公開日 平成6年(1994)6月10日

(51)Int.Cl.⁵

H 0 1 M 8/02

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

S 8821-4K

B 8821-4K

R 8821-4K

審査請求 未請求 請求項の数38(全 17 頁)

(21)出願番号 特願平4-214481

(22)出願日 平成4年(1992)7月2日

(31)優先権主張番号 7 2 4 4 2 2

(32)優先日 1991年7月2日

(33)優先権主張国 米国(US)

(71)出願人 591002016

インスティテュート・オブ・ガス・テクノロジー

INSTITUTE OF GAS TECHNOLOGY

アメリカ合衆国イリノイ州60616, シカゴ,
サウス・ステート・ストリート 3424

(72)発明者 レナード・ジー・マリアノウスキ

アメリカ合衆国イリノイ州60056, マウン
ト・プロスペクト, サウス・エルムハース
ト・ロード 507

(74)代理人 弁理士 湯浅 恭三 (外6名)

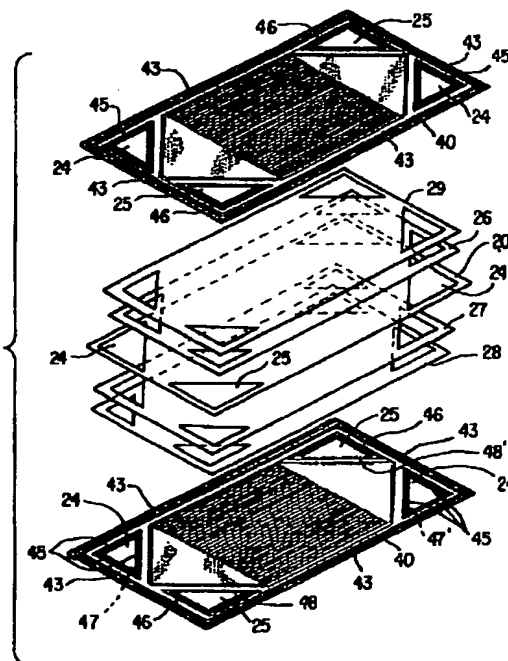
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 完全内部マニホールド付き燃料電池スタック

(57)【要約】 (修正有)

【目的】高温熔融カーボネート燃料電池スタックの提供。

【構成】伸長したマニホールドウエットシール構造を貫通する導管は、セパレータープレート40の一つの面のマニホールドとアノード室との第一の組の間でガスの連絡を付与し、セパレータープレートの反対面の伸長したマニホールドウエットシール構造を貫通する導管は、セパレータープレートの他の面のマニホールドとカソード室との第二の組の間でガスの連絡を付与し、反応物ガスマニホールドの伸長したマニホールド構造を貫通する導管は、散在したリホーミング室に連絡を付与し、薄い金属プレートから形成される伸長したウエットシール構造は柔軟性とレジリエンスに制限を与え、良好なシーリングを確実にする。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池単位を含んで成る燃料電池スタックにして、

各燃料電池単位はアノードとカソード；該アノードの電解質に面する面と1側面で接触し、かつ該カソードの電解質に面する面と反対側の側面で接触している電解質；及び該燃料電池単位をアノードとカソードとの間で分離するセパレーター板にして該セパレーター板のアノードに面する面と該アノードとの間にアノード室を形成し、かつ該セパレーター板のカソードに面する反対側の面と、1つの隣接する該燃料電池単位のカソードのセパレーターに面する面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り、

該アノード室は燃料ガスを供給、流出させることができるように気体連通されており、そして該カソード室はオキシダントガスを供給、流出させることができるように気体連通されている該燃料電池スタックにおいて、

該電解質と該セパレーター板が該燃料電池スタックの周辺端縁まで延在しており；該セパレーター板は、それらセパレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在し、それらの周辺を完全に取囲んで、運転条件下で約1インチ幅より狭いセパレーター板／電解質ウェットシールを形成している平らにされた周辺ウェットシール構造体を有し；該電解質と該セパレーター板とは各々複数の整列された穴を有し、該セパレーター板の該穴は、該電池スタックを通して延在する複数のガスマニホールドを形成するように電池の運転条件下で約1インチ幅未満のセパレーター板／電解質ウェットシールを形成している、該セパレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在している平らにされたマニホールドウェットシール構造体で包囲されており；該延在マニホールドウェットシール構造体を通る導管が1組の該マニホールドと該アノード室との間で該セパレーター板の1つの面上において燃料ガスを連通させるようになっており；そして該延在マニホールドウェットシール構造体を通る導管が該マニホールドの第2の組と該カソード室との間で該セパレーター板の他の面上においてオキシダントガスを連通させるようになっており；それによって燃料ガスとオキシダントガスとを該燃料電池スタック中の該各単位燃料電池に及び該各単位燃料電池から完全に内部マニホールドするようになっている；ことを特徴とする前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタックの端板が該セパレーター板とそれらの内面上で同じに適合され、該燃料電池スタックの各端部上で半電池を形成している請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 該燃料電池スタックにその軸に沿って、2枚のセパレーター／リホーマー板で各々形成されている複数のリホーミング室が所定間隔で配置されており；1つのセパレーター／リホーマー板は該アノード室の該

セパレーター板に面する面の該アノードに面する面の形状を有し、第2のセパレーター／リホーマー板は該カソード室の該セパレーター板に面する面の該カソードに面する面の形状を有し；2枚の該セパレーター／リホーマー板はそれらの端縁領域においてリホーマー室を取り囲むように接合、封止されており；該延在マニホールドウェットシール構造体を通る複数の導管が反応ガスとスチームを第3の組の該マニホールドから該リホーマー室に連通させ；そして該延在マニホールドウェットシール構造体を通る複数の導管が水素に富む生成ガスを燃料ガス供給マニホールドに連通させ；それによって反応ガスとスチームを該燃料電池スタック中の各該リホーマー単位に、また生成ガスを各該リホーマー単位から完全に内部マニホールドするようになっている請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 該セパレーター板と該セパレーター／リホーマー板が厚さ約0.010～0.050インチのプレス成型された金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 該セパレーター板と該セパレーター／リホーマー板の1つの面上の平らにされた該周辺ウェットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在周辺ウェットシールを形成するように該板のプレス成型体（shaping）を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在周辺ウェットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体（shape）を含んで成る、請求項4に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 該板の1つの面上の該延在マニホールドウェットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在マニホールドウェットシールを形成するように該板のプレス成型体を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在マニホールドウェットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体を含んで成る、請求項5に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 該リホーマー室に約5～約10個の隣接する燃料電池単位の群が所定間隔で配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 前記セパレーター及びセパレーター／リホーマーのプレートが、約0.010～約0.050インチの厚さのプレスされた金属プレートである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 前記平らにされた周辺ウェットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウェットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウェットシールを成形しているプレスされた板金の

形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セパレータープレート1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 前記ウエットシールの幅が約1/4〜3/4インチである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 前記アノードに面した側の前記セパレータープレートがニッケル及び銅より成る群から選択される1種類の金属で塗装又は被覆されている請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 前記電解質が1種類の固体イオン導体／固体オキシドの化合物を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 前記電解質がアルカリ金属カーボネートを含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 前記電解質がカーボネートタイプ及びマトリックスタイプの形態で前記燃料電池スタックに組み入れられている請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含み、前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 集電装置が、前記アノード及び前記カソードのうち少なくとも1つと前記セパレータープレートとの間にある請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 複数の燃料電池ユニットからなり、各燃料電池ユニットがアノード及びカソード、そのアノ

ードの電解質対向面と一方の側面で接しそしてそのカソードの電解質対向面と他方の側面で接している電解質、及びアノードとカソードとの間でそれらの燃料電池ユニット同志を分離してそのセパレーター板のアノード対向面とそのアノードとの間にアノード室を形成すると共にそのセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットのカソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成するセパレーター板からなり、そのアノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通しそしてそのカソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している；燃料電池スタックにおいて、それらの電解質、アノード、カソード及びセパレーター板は、燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており、

セパレーター板は、それらの周囲全体にわたって各面において約1インチより少ない幅の電解質と接するように延在する平らな周辺ウエットシール構造を有して、電池の運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成し、

電解質、アノード、カソード及びセパレーター板はそれぞれ複数の整列したパーホレーションを有し、

セパレーター板のそれらのパーホレーションは、セパレーター板の各面において電極及び集電体の少なくとも一方の約1インチより少ない幅と接するように延在する平らなマニホールドウエットシール構造により取り囲まれて、電池運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成して、電池スタックを貫いて延在する複数のマニホールド、その延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の一方の面上の1組のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及びその延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の他方の面上の別の1組のマニホールドとカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成させ、それにより燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池へのならびにそれからの燃料及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与えることからなる改良。

【請求項19】 請求項18記載の燃料電池スタックにおいて、電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている燃料電池スタック。

【請求項20】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、燃料電池スタックは、その軸に沿って、それぞれが二つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーミング室を散在させており、それらのセパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の一つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そしてセパレーター／リホーマー板の他方がカソード室の一つに対面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し、上記二つのセパレーター／リホーマー板

はそれらの縁部において密封結合してリホーマー室を封入しており、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は第3番目の組のマニホールドからリホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与え、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は燃料ガス供給マニホールドへの強化水素生成ガスの連通を与え、それにより燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応剤ガス及び空気ならびに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホールドシステムを与える燃料電池スタック。

【請求項21】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板及びセパレーター／リホーマー板は約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である燃料電池スタック。

【請求項22】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造は、その板のその一方の面上に前記延在周囲ウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そしてその板の他方の面においては該板のその他方の面に固着された延在周囲ウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項23】 請求項22記載の燃料電池スタックにおいて、該板の一方の面上に延在するマニホールドウエットシール構造は、該板の該一方の面上に前記延在マニホールドウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そして該板の他方の面においては該板の他方の面に固着された延在マニホールドウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項24】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、該リホーマー室は、約5～約10の隣接燃料電池ユニットからなる群の間に散在されている燃料電池スタック。

【請求項25】 セパレータープレートが約0.010～約0.050インチの厚さの加圧金属プレートである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項26】 セパレータープレートの1つの面上の延長したマニホールドウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、および該セパレータープレートの他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する約0.010～約0.050インチの厚さの加圧シート金属成型物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項27】 ウエットシールの巾が約1/4～約3/4インチである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項28】 上記アノードに面した側のセパレータ

ープレートがニッケウおよび銅からなる群より選択された金属で被覆または被着された請求項18の燃料電池スタック。

【請求項29】 電極が固体イオン導体／固体酸化物化合物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項30】 電解質がアルカリ金属カルボン酸塩からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項31】 電解質がカーボネートテープおよびマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている請求項30の燃料電池スタック。

【請求項32】 セパレータープレートの1つの面上の偏平な周辺のウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該セパレータープレートの上記1つの面上に該延長した周辺のマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、該セパレータープレートの他の面上では、該プレートは該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長した周辺のマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなり、該セパレータープレートの上記1つの面上の該延長したマニホールドウエットシール構造は、該セパレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、および該セパレータープレートの他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなる請求項30の燃料電池スタック。

【請求項33】 上記集電装置が燃料電池スタックの周辺縁部にまで延びている請求項18の燃料電池スタック。

【請求項34】 アノード、セパレータープレート、およびカソードからなる燃料電池ユニット用サブアセンブリであって、

該燃料電池ユニットは上記アノード、カソードおよび燃料電池スタックの縁部に延びるセパレータープレートを有し、該セパレータープレートは、約1インチ未満の巾の、完全にそれらの周辺部全体の各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造を有し、上記あの一ど、上記カソード、および上記セパレータープレートは各々多数の整列した穿孔を有し、該セパレータープレートの穿孔は約1インチ未満の巾の、完全に該穿孔の周囲のセパレータープレートの各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造によって囲まれており、燃料ガスを上記延長したマニホールドウエットシール構造を通して上記マニホールドと上記セパレータープレートの1つの面上のアノードチャンバーとの間に流通させる導管および酸素ガスを上記延長したマニホールドウエットシール構造を通してもう1組の上記マニホールドと上記セパレータープレートの他の面上のカソードチャンバーとの間に流通させる導管を有することによって、各シール部分で封止接

合された上記燃料電池スタック、上記アノード、上記セバレータプレートおよび上記カソードにおける各ユニット燃料電池に、燃料ガスと酸素ガスを流入させかつ流出させることができるようにしたサブアセンブリー。

【請求項35】 封止接合が溶接である請求項34のサブアセンブリー。

【請求項36】 セバレータプレートとウエットシール構造がウエットシール構造の偏平部分において厚さ約0.010〜約0.050インチであり、巾約1/4〜約3/4インチである請求項34のサブアセンブリー。

【請求項37】 集電装置が上記アノードか上記カソードの少なくとも一方と上記セバレータプレートとの間にある請求項34のサブアセンブリー。

【請求項38】 集電装置が燃料電池スタックの縁部に延びている請求項37のサブアセンブリー。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は内部マニホールドを有する燃料電池スタックおよび内部マニホールドを有し且つ内部リフォームされた燃料電池スタックに関し、そして特にそのためのアノード／電流コレクター／セバレータプレート／電流コレクター／カソードからなるサブアセンブリーに関し、該サブアセンブリーは、電解質と組み合わせた時該電解質と電極との間にウエットシールを有するものである。このサブアセンブリーは、アセンブリーに対する安全と長期安定性を提供し、そしてセバレータプレートの設計は複数の内部リホーミングチャンバーを有することを可能とし、該チャンバーはアノードチャンバーと分離されてスタックの高さ方向に沿って配置されている。本発明は特に熔融炭酸塩および固形コンダクター／固形酸化物燃料電池に適用できる。

【0002】

【従来の技術】一般に、燃料電池電気発生ユニットは、不活性なもしくは二極性の電気伝導性鉄系金属セバレータプレートによって分離された各電池の複数のスタックからなっている。各電池は互いにサンドイッチ状に挟みあって固定された一つのスタックユニットをなして、所望の燃料電池エネルギー発生装置を形成する。各電池は一般にアノード及びカソード電極、共通の電解質タイル、および燃料と酸化ガスの供給源を含んでいる。燃料ガスおよび酸化ガスは双方とも、マニホールドを通して、セバレータプレートと電解質タイルとの間の夫々の反応成分チャンバーに導入される。電解質と他の電池成分との接触領域は、燃料ガスと酸化ガスの分離を維持しそしてガス漏れを防止および／または最小限にするため、ウエットシールとして知られている。初期の燃料電池の欠陥に関与する主な要因は、ウエットシール領域の腐食と疲弊である。この欠陥は、高温の腐食性電解質の接触および電池の熱サイクルの間の温度の大幅な変動に起因する高度な熱ストレスにより加速され、結晶内およ

び結晶間クラッキングによる構造の脆弱化を招来する。このような欠陥は望ましからぬ燃料ガスおよび／または酸化ガスの混合および系外へのガス漏れを引き起こし、意図する酸化還元反応を阻害して、電池の電流発生の下および最終的停止を生じる。約500ないし700℃の範囲の燃料電池運転条件においては、熔融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料電池のハウジングとしておよびセバレータプレートとして必要な鉄系金属に対して非常に腐食性である。熔融炭酸塩燃料電池スタックの高温運転は、ウエットシール領域における腐食と熱ストレスの問題を増大し、このことは隣りあう材料の熱膨張係数が異なる場合に特に顕著である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、組み立てたスタックの各電池へ出入りする燃料ガスおよび酸化ガスのための、電池成分の設計により組み立ての容易さ、長期耐久性および燃料電池運転の安定性を提供する様式で、完全に内部化したマニホールドを提供する。本発明はまた、リホーミング触媒の疲弊なしに行なえる炭化水素含有燃料の内部電池リホーミングのための、独立したリホーミングチャンバーのための内部マニホールドを提供することもできる。リホーミング用メタンが酸化炭素と水素に変化する吸熱反応が、電池スタック内で有利に行われる。

【従来の技術】

【0004】商業的に実行できるカーボネート燃料電池のスタックは、各々8フィート四方の平面積を有する約600以上の電池を含んでよい。このような個々の電池のスタックにおいて、分離用板は、各々が1セットの分離用板の間に入れられた燃料及びオキシダントから個々の電池を分離し、燃料は分離用板の1面と電解質マトリックスのアノード側との間に入れられ、オキシダントは分離用板の他方の面と二次電解質マトリックスのカソード側との間に入れられる。

【0005】燃料電池の開発において強調されてきたことは、燃料電池スタックから物理的に分離可能なチャンネルマニホールドを使用することにより、燃料とオキシダントガスを外部マニフォールディングすることである。しかしながら、各電池の入力及び出力はそれぞれの入力マニホールド及び出力マニホールドに開かれていなければならない、入力マニホールド及び出力マニホールドは電池スタックの外面上にクランプされていなければならない。電気的なショートを避けるために、金属マニホールドと電池スタックとの間を絶縁しなければならない。外部マニフォールディングには、電池スタックの電位傾度に沿ってガスケット内でカーボネートの吸入排出を防止している間、マニホールド／マニホールドガスケット／電池スタックの界面において十分なガスシールを維持するために重大な問題が存在する。電池スタックから金属マニホールドを絶縁するためのさ

さまざまな組み合わせが使用されてきたが、高温熔融カーボネートの燃料電池操作条件下においてはカーボネートが浸透できないにもかかわらず、ガス密封のスライディングシールを提供すること及び電氣的に絶縁することは困難であり、満足の行く解決は見いだせなかった。マニフォルディング及びシールディングの問題は、多数の電池及び広い平面積を電池スタックに使用する場合、より厳密になる。大多数の電池を使用する場合は、スタックの高さに沿ったシール領域内でカーボネートを動かす電位が増加し、そして電池の平面積が増加する場合は、各成分の線状許容量及び各成分の側面配列は、マニフォルド/マニフォルドガスケット/電池スタック間の表面のシールを維持するのが極端に困難になる。

【0006】600の電池を含むセルスタックス (cell stacks) は約10フィート (3.048メートル) もの高さになり得るので、外部マニホルド (external manifolds) の剛性 (stiffness) が要求されること及びマニホルドをセルスタック (cell stack) 上に押圧するのに必要な締付力の使用といった重大な問題が生じる。セルアセンブリー (cell assembly) とセル操作条件との間の熱勾配、示差熱膨張 (differential thermal expansion)、及びマニホルドに使用される材料の必要な強度のために、精密許容差及び非常に困難な工学的問題点が生じる。

【0007】従来は、個々の熔融カーボネート燃料電池は、分離板 (separator plate) の外面周囲にスペーサーストリップ (spacer strips) を設けてウエットシールを形成するとともに取入れ及び排出マニホルドを形成していた。高温燃料電池のウエットシール部分の環境における様々なシール手段は、以下の米国特許に開示されている。米国特許第4, 579, 788号はウエットシールストリップを粉末冶金技術を利用して製作することを教示している。米国特許第3, 723, 186号は、電解質自体がその周囲の領域にある不活性材料から成り当該電解質とフレーム若しくはハウジングとの間で不活性周辺シールを作っていることを教示している。米国特許第4, 160, 067号は、ウエットシール部分における燃料電池のハウジング若しくはセパレーター上への不活性材料の蒸着 (deposition)、又はこのいずれかに含浸された不活性材料の蒸着を教示している。米国特許第3, 867, 206号は、電解質飽和マトリックスと電極の電解質飽和周辺縁端との間におけるウエットシールを教示している。米国特許第4, 761, 348号は、ガス不透過性材料の周辺レールによってガスシール機能を付与しオキシダント及び燃料ガスからアノードとカソードをそれぞれ隔離することを教示している。米国特許第4, 329, 403号は、電極から内部電解質領域への移動に

際し、熱膨張係数がより漸進的に変化する電解質組成物を教示している。米国特許第3, 514, 333号は、薄いアルミニウムのシール用ガスケットを用いた高温燃料電池におけるアルカリ金属カーボネートのハウジングを教示している。上記の特許をいずれも、燃料電池スタックにおける内部燃料とオキシダントの周囲のシールを扱ってはいない。

【0008】リン酸燃料電池 (約150℃ないし220℃で作動する) のガスシールを、電池の構成要素の多孔質材料周囲の細孔の炭化ケイ素及び/又は窒化ケイ素でふさぐことによって行うことが米国特許第4, 781, 727号に、また支持板縁端 (substrate plate edge) に透き間のある空間 (interstitial spaces) を設けることによって行うことが米国特許第4, 786, 568号および第4, 824, 739号に、それぞれ教示されている。燃料のみの内部マニホルディング (internal manifolding) について低温電解槽 (low temperature electrolytic cells) において直面するシール及び腐食の問題の解決、例えば、米国特許第4, 259, 389号に教示されている顆粒状不活性材料のポリテトラフルオロエチレンをもちいた接着、米国特許第3, 012, 086号に教示されているポリエチレンのガスケット、及び米国特許第3, 589, 941号に教示されている“O”リングシール等は、高温熔融カーボネート燃料電池に適しているとはいえない。

【0009】米国特許第4, 510, 213号は、電池ユニットの活性部分 (active portion) と取り囲んでいるトランジションフレーム (transition frame) によって個々の電池のガスコンパートメント (gas compartment) に燃料とオキシダントマニホルドを与え、当該マニホルドはセパレーターも当該電池の電解質タイル (electrolyte tile) も貫通しないことを教示している。このトランジションフレームは隣接する電池間で複雑な絶縁を必要とし、いくつかの独立した複雑な部分から成っている。米国特許第4, 708, 916号は、熔融カーボネート燃料電池に関する燃料の内部マニホルディング及びオキシダントの外部マニホルディングを教示している。上記熔融カーボネート燃料電池においては、何組かの燃料マニホルドが個々の電池の中央部分及び両未満にある電解質とセパレーターのみではなく電極をも貫通して、短縮された燃料用流路を形成している。末端の燃料マニホルドはセパレータープレート (edge wall area) にあり、一方、中央部の燃料マニホルドは厚い中央部領域を貫通しており、カーボネートで含浸されたシール用テーブ又は独立した円筒状コンジットインサート (conduit insert) はカソードを貫通して延

長されている。

【0010】内部のマニホールド化は、電池の対向縁に沿った複数のマニホールド孔を用いたことにより燃料ガスとオキシダントガスとに並流又は向流を与えるように意図されていた。燃料用のこれらマニホールド孔は反対縁に沿った拡大された周辺ウェットシール領域中に配置されていたが、マニホールドは電解液の外部構造が複雑であり、少なくとも1つの電極を通過する。しかしながら、隣接するマニホールド孔は燃料用及びオキシダント用に使用され、これは短いウェットシートを横切る短い

10 通路、ガスの漏出を与え、更に必然的に拡大された周辺シール領域により電池の活性領域の好ましくない減少を与える。例えば、米国特許4,769,298を参照されたい。

【0011】同様に、内部マニホールド化の従来の試みでは、電池の4つの全ての縁のそれぞれに、拡大された周辺ウェットシール領域に沿って複数のマニホールド孔を用いた。しかしながら、前述の様に隣接する燃料及びオキシダント用マニホールド間の短い通路、同様な複雑な構造及び孔により、ガスの漏出を生じ、更に電池の活

20 性領域を減じた。

【0012】燃料としてガス化生成物を用いた場合、炭化水素成分を改質し、燃料電池スタック内の内部改質による燃料内の水素含量を増加することが好ましい。しかしながら、従来の改質触媒は、その活性サイトが炭酸塩の膜によって被覆されるため、熔融炭酸塩電解質により失活することが知られている。("Development of Internal Reforming Catalysts for the Direct Fuel Cell", Michael Tarjany, Lawrence Paetsch, Randolph Bernard, Hossin Ghezal-Ayagh, 1985, Fuel Cell Seminar, Tucson, Ariz, May 19-22, 1985, pp. 177-181, 参照)。

【0013】更に、熔融炭酸塩燃料電池の長期の耐久性を損なう別の問題点は、熔融炭酸塩電解質による多孔性アノード構造の変形、流体集積体、分離板等のようなアノード側のハードウェアの腐食、及びそれによる電解質の損失、及びアノードとカソードの溶解による多孔性アノードを通るガスのクロスオーバー、電解質の損失を生じることである。燃料電池に長期間の安定性及び耐久性を与えるために、これらの1または2以上の問題点を解決するための多くの試みがなされてきた。

【0014】燃料電池のアノード室への燃料供給流の水素含量を増加させることは、幾つかの特許に示されている。米国特許3,266,938には複数の高温燃料電池を連続的に配置し、それによって、連続配置中の第1の電池のアノード室からの排ガスを電池の外部で吸熱反応により接触改質して追加の水素を生産し、次いで配列中の第2のアノード室に通す。第2の燃料電池のアノード室の排ガスは電池の外部で接触発熱転換反応に付し、水素を生産し、配置中の第3の燃料電池のアノード室に

30 35 40 45 50 55 60 65 70 75 80 85 90 95 100 105 110 115 120 125 130 135 140 145 150 155 160 165 170 175 180 185 190 195 200 205 210 215 220 225 230 235 240 245 250 255 260 265 270 275 280 285 290 295 300 305 310 315 320 325 330 335 340 345 350 355 360 365 370 375 380 385 390 395 400 405 410 415 420 425 430 435 440 445 450 455 460 465 470 475 480 485 490 495 500 505 510 515 520 525 530 535 540 545 550 555 560 565 570 575 580 585 590 595 600 605 610 615 620 625 630 635 640 645 650 655 660 665 670 675 680 685 690 695 700 705 710 715 720 725 730 735 740 745 750 755 760 765 770 775 780 785 790 795 800 805 810 815 820 825 830 835 840 845 850 855 860 865 870 875 880 885 890 895 900 905 910 915 920 925 930 935 940 945 950 955 960 965 970 975 980 985 990 995 1000 1005 1010 1015 1020 1025 1030 1035 1040 1045 1050 1055 1060 1065 1070 1075 1080 1085 1090 1095 1100 1105 1110 1115 1120 1125 1130 1135 1140 1145 1150 1155 1160 1165 1170 1175 1180 1185 1190 1195 1200 1205 1210 1215 1220 1225 1230 1235 1240 1245 1250 1255 1260 1265 1270 1275 1280 1285 1290 1295 1300 1305 1310 1315 1320 1325 1330 1335 1340 1345 1350 1355 1360 1365 1370 1375 1380 1385 1390 1395 1400 1405 1410 1415 1420 1425 1430 1435 1440 1445 1450 1455 1460 1465 1470 1475 1480 1485 1490 1495 1500 1505 1510 1515 1520 1525 1530 1535 1540 1545 1550 1555 1560 1565 1570 1575 1580 1585 1590 1595 1600 1605 1610 1615 1620 1625 1630 1635 1640 1645 1650 1655 1660 1665 1670 1675 1680 1685 1690 1695 1700 1705 1710 1715 1720 1725 1730 1735 1740 1745 1750 1755 1760 1765 1770 1775 1780 1785 1790 1795 1800 1805 1810 1815 1820 1825 1830 1835 1840 1845 1850 1855 1860 1865 1870 1875 1880 1885 1890 1895 1900 1905 1910 1915 1920 1925 1930 1935 1940 1945 1950 1955 1960 1965 1970 1975 1980 1985 1990 1995 2000 2005 2010 2015 2020 2025 2030 2035 2040 2045 2050 2055 2060 2065 2070 2075 2080 2085 2090 2095 2100 2105 2110 2115 2120 2125 2130 2135 2140 2145 2150 2155 2160 2165 2170 2175 2180 2185 2190 2195 2200 2205 2210 2215 2220 2225 2230 2235 2240 2245 2250 2255 2260 2265 2270 2275 2280 2285 2290 2295 2300 2305 2310 2315 2320 2325 2330 2335 2340 2345 2350 2355 2360 2365 2370 2375 2380 2385 2390 2395 2400 2405 2410 2415 2420 2425 2430 2435 2440 2445 2450 2455 2460 2465 2470 2475 2480 2485 2490 2495 2500 2505 2510 2515 2520 2525 2530 2535 2540 2545 2550 2555 2560 2565 2570 2575 2580 2585 2590 2595 2600 2605 2610 2615 2620 2625 2630 2635 2640 2645 2650 2655 2660 2665 2670 2675 2680 2685 2690 2695 2700 2705 2710 2715 2720 2725 2730 2735 2740 2745 2750 2755 2760 2765 2770 2775 2780 2785 2790 2795 2800 2805 2810 2815 2820 2825 2830 2835 2840 2845 2850 2855 2860 2865 2870 2875 2880 2885 2890 2895 2900 2905 2910 2915 2920 2925 2930 2935 2940 2945 2950 2955 2960 2965 2970 2975 2980 2985 2990 2995 3000 3005 3010 3015 3020 3025 3030 3035 3040 3045 3050 3055 3060 3065 3070 3075 3080 3085 3090 3095 3100 3105 3110 3115 3120 3125 3130 3135 3140 3145 3150 3155 3160 3165 3170 3175 3180 3185 3190 3195 3200 3205 3210 3215 3220 3225 3230 3235 3240 3245 3250 3255 3260 3265 3270 3275 3280 3285 3290 3295 3300 3305 3310 3315 3320 3325 3330 3335 3340 3345 3350 3355 3360 3365 3370 3375 3380 3385 3390 3395 3400 3405 3410 3415 3420 3425 3430 3435 3440 3445 3450 3455 3460 3465 3470 3475 3480 3485 3490 3495 3500 3505 3510 3515 3520 3525 3530 3535 3540 3545 3550 3555 3560 3565 3570 3575 3580 3585 3590 3595 3600 3605 3610 3615 3620 3625 3630 3635 3640 3645 3650 3655 3660 3665 3670 3675 3680 3685 3690 3695 3700 3705 3710 3715 3720 3725 3730 3735 3740 3745 3750 3755 3760 3765 3770 3775 3780 3785 3790 3795 3800 3805 3810 3815 3820 3825 3830 3835 3840 3845 3850 3855 3860 3865 3870 3875 3880 3885 3890 3895 3900 3905 3910 3915 3920 3925 3930 3935 3940 3945 3950 3955 3960 3965 3970 3975 3980 3985 3990 3995 4000 4005 4010 4015 4020 4025 4030 4035 4040 4045 4050 4055 4060 4065 4070 4075 4080 4085 4090 4095 4100 4105 4110 4115 4120 4125 4130 4135 4140 4145 4150 4155 4160 4165 4170 4175 4180 4185 4190 4195 4200 4205 4210 4215 4220 4225 4230 4235 4240 4245 4250 4255 4260 4265 4270 4275 4280 4285 4290 4295 4300 4305 4310 4315 4320 4325 4330 4335 4340 4345 4350 4355 4360 4365 4370 4375 4380 4385 4390 4395 4400 4405 4410 4415 4420 4425 4430 4435 4440 4445 4450 4455 4460 4465 4470 4475 4480 4485 4490 4495 4500 4505 4510 4515 4520 4525 4530 4535 4540 4545 4550 4555 4560 4565 4570 4575 4580 4585 4590 4595 4600 4605 4610 4615 4620 4625 4630 4635 4640 4645 4650 4655 4660 4665 4670 4675 4680 4685 4690 4695 4700 4705 4710 4715 4720 4725 4730 4735 4740 4745 4750 4755 4760 4765 4770 4775 4780 4785 4790 4795 4800 4805 4810 4815 4820 4825 4830 4835 4840 4845 4850 4855 4860 4865 4870 4875 4880 4885 4890 4895 4900 4905 4910 4915 4920 4925 4930 4935 4940 4945 4950 4955 4960 4965 4970 4975 4980 4985 4990 4995 5000 5005 5010 5015 5020 5025 5030 5035 5040 5045 5050 5055 5060 5065 5070 5075 5080 5085 5090 5095 5100 5105 5110 5115 5120 5125 5130 5135 5140 5145 5150 5155 5160 5165 5170 5175 5180 5185 5190 5195 5200 5205 5210 5215 5220 5225 5230 5235 5240 5245 5250 5255 5260 5265 5270 5275 5280 5285 5290 5295 5300 5305 5310 5315 5320 5325 5330 5335 5340 5345 5350 5355 5360 5365 5370 5375 5380 5385 5390 5395 5400 5405 5410 5415 5420 5425 5430 5435 5440 5445 5450 5455 5460 5465 5470 5475 5480 5485 5490 5495 5500 5505 5510 5515 5520 5525 5530 5535 5540 5545 5550 5555 5560 5565 5570 5575 5580 5585 5590 5595 5600 5605 5610 5615 5620 5625 5630 5635 5640 5645 5650 5655 5660 5665 5670 5675 5680 5685 5690 5695 5700 5705 5710 5715 5720 5725 5730 5735 5740 5745 5750 5755 5760 5765 5770 5775 5780 5785 5790 5795 5800 5805 5810 5815 5820 5825 5830 5835 5840 5845 5850 5855 5860 5865 5870 5875 5880 5885 5890 5895 5900 5905 5910 5915 5920 5925 5930 5935 5940 5945 5950 5955 5960 5965 5970 5975 5980 5985 5990 5995 6000 6005 6010 6015 6020 6025 6030 6035 6040 6045 6050 6055 6060 6065 6070 6075 6080 6085 6090 6095 6100 6105 6110 6115 6120 6125 6130 6135 6140 6145 6150 6155 6160 6165 6170 6175 6180 6185 6190 6195 6200 6205 6210 6215 6220 6225 6230 6235 6240 6245 6250 6255 6260 6265 6270 6275 6280 6285 6290 6295 6300 6305 6310 6315 6320 6325 6330 6335 6340 6345 6350 6355 6360 6365 6370 6375 6380 6385 6390 6395 6400 6405 6410 6415 6420 6425 6430 6435 6440 6445 6450 6455 6460 6465 6470 6475 6480 6485 6490 6495 6500 6505 6510 6515 6520 6525 6530 6535 6540 6545 6550 6555 6560 6565 6570 6575 6580 6585 6590 6595 6600 6605 6610 6615 6620 6625 6630 6635 6640 6645 6650 6655 6660 6665 6670 6675 6680 6685 6690 6695 6700 6705 6710 6715 6720 6725 6730 6735 6740 6745 6750 6755 6760 6765 6770 6775 6780 6785 6790 6795 6800 6805 6810 6815 6820 6825 6830 6835 6840 6845 6850 6855 6860 6865 6870 6875 6880 6885 6890 6895 6900 6905 6910 6915 6920 6925 6930 6935 6940 6945 6950 6955 6960 6965 6970 6975 6980 6985 6990 6995 7000 7005 7010 7015 7020 7025 7030 7035 7040 7045 7050 7055 7060 7065 7070 7075 7080 7085 7090 7095 7100 7105 7110 7115 7120 7125 7130 7135 7140 7145 7150 7155 7160 7165 7170 7175 7180 7185 7190 7195 7200 7205 7210 7215 7220 7225 7230 7235 7240 7245 7250 7255 7260 7265 7270 7275 7280 7285 7290 7295 7300 7305 7310 7315 7320 7325 7330 7335 7340 7345 7350 7355 7360 7365 7370 7375 7380 7385 7390 7395 7400 7405 7410 7415 7420 7425 7430 7435 7440 7445 7450 7455 7460 7465 7470 7475 7480 7485 7490 7495 7500 7505 7510 7515 7520 7525 7530 7535 7540 7545 7550 7555 7560 7565 7570 7575 7580 7585 7590 7595 7600 7605 7610 7615 7620 7625 7630 7635 7640 7645 7650 7655 7660 7665 7670 7675 7680 7685 7690 7695 7700 7705 7710 7715 7720 7725 7730 7735 7740 7745 7750 7755 7760 7765 7770 7775 7780 7785 7790 7795 7800 7805 7810 7815 7820 7825 7830 7835 7840 7845 7850 7855 7860 7865 7870 7875 7880 7885 7890 7895 7900 7905 7910 7915 7920 7925 7930 7935 7940 7945 7950 7955 7960 7965 7970 7975 7980 7985 7990 7995 8000 8005 8010 8015 8020 8025 8030 8035 8040 8045 8050 8055 8060 8065 8070 8075 8080 8085 8090 8095 8100 8105 8110 8115 8120 8125 8130 8135 8140 8145 8150 8155 8160 8165 8170 8175 8180 8185 8190 8195 8200 8205 8210 8215 8220 8225 8230 8235 8240 8245 8250 8255 8260 8265 8270 8275 8280 8285 8290 8295 8300 8305 8310 8315 8320 8325 8330 8335 8340 8345 8350 8355 8360 8365 8370 8375 8380 8385 8390 8395 8400 8405 8410 8415 8420 8425 8430 8435 8440 8445 8450 8455 8460 8465 8470 8475 8480 8485 8490 8495 8500 8505 8510 8515 8520 8525 8530 8535 8540 8545 8550 8555 8560 8565 8570 8575 8580 8585 8590 8595 8600 8605 8610 8615 8620 8625 8630 8635 8640 8645 8650 8655 8660 8665 8670 8675 8680 8685 8690 8695 8700 8705 8710 8715 8720 8725 8730 8735 8740 8745 8750 8755 8760 8765 8770 8775 8780 8785 8790 8795 8800 8805 8810 8815 8820 8825 8830 8835 8840 8845 8850 8855 8860 8865 8870 8875 8880 8885 8890 8895 8900 8905 8910 8915 8920 8925 8930 8935 8940 8945 8950 8955 8960 8965 8970 8975 8980 8985 8990 8995 9000 9005 9010 9015 9020 9025 9030 9035 9040 9045 9050 9055 9060 9065 9070 9075 9080 9085 9090 9095 9100 9105 9110 9115 9120 9125 9130 9135 9140 9145 9150 9155 9160 9165 9170 9175 9180 9185 9190 9195 9200 9205 9210 9215 9220 9225 9230 9235 9240 9245 9250 9255 9260 9265 9270 9275 9280 9285 9290 9295 9300 9305 9310 9315 9320 9325 9330 9335 9340 9345 9350 9355 9360 9365 9370 9375 9380 9385 9390 9395 9400 9405 9410 9415 9420 9425 9430 9435 9440 9445 9450 9455 9460 9465 9470 9475 9480 9485 9490 9495 9500 9505 9510 9515 9520 9525 9530 9535 9540 9545 9550 9555 9560 9565 9570 9575 9580 9585 9590 9595 9600 9605 9610 9615 9620 9625 9630 9635 9640 9645 9650 9655 9660 9665 9670 9675 9680 9685 9690 9695 9700 9705 9710 9715 9720 9725 9730 9735 9740 9745 9750 9755 9760 9765 9770 9775 9780 9785 9790 9795 9800 9805 9810 9815 9820 9825 9830 9835 9840 9845 9850 9855 9860 9865 9870 9875 9880 9885 9890 9895 9900 9905 9910 9915 9920 9925 9930 9935 9940 9945 9950 9955 9960 9965 9970 9975 9980 9985 9990 9995 10000 10005 10010 10015 10020 10025 10030 10035 10040 10045 10050 10055 10060 10065 10070 10075 10080 10085 10090 10095 10100 10105 10110 10115 10120 10125 10130 10135 10140 10145 10150 10155 10160 10165 10170 10175 10180 10185 10190 10195 10200 10205 10210 10215 10220 10225 10230 10235 10240 10245 10250 10255 10260 10265 10270 10275 10280 10285 10290 10295 10300 10305 10310 10315 10320 10325 10330 10335 10340 10345 10350 10355 10360 10365 10370 10375 10380 10385 10390 10395 10400 10405 10410 10415 10420 10425 10430 10435 10440 10445 10450 10455 10460 10465 10470 10475 10480 10485 10490 10495 10500 10505 10510 10515 10520 10525 10530 10535 10540 10545 10550 10555 10560 10565 10570 10575 10580 10585 10590 10595 10600 10605 10610 10615 10620 10625 10630 10635 10640 10645 10650 10655 10660 10665 10670 10675 10680 10685 10690 10695 10700 10705 10710 10715 10720 10725 10730 10735 10740 10745 10750 10755 10760 10765 10770 10775 10780 10785 10790 10795 10800 10805 10810 10815 10820 10825 10830 10835 10840 10845 10850 10855 10860 10865 10870 10875 10880 10885 10890 10895 10900 10905 10910 10915 10920 10925 10930 10935 10940 10945 10950 10955 10960 10965 10970 10975 10980 10985 10990 10995 11000 11005 11010 11015 11020 11025 11030 11035 11040 11045 11050 11055 11060 11065 11070 11075 11080 11085 11090 11095 11100 11105 11110 11115 11120 11125 11130 11135 11140 11145 11150 11155 11160 11165 11170 11175 11180 11185 11190 11195 11200 11205 11210 11215 11220 11225 11230

【0017】本発明はまた、燃料電池スタック内に炭化水素性 (hydrocarbonaceous) 燃料を再構成するための分離された容器を有する完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供でき、付加的な水素燃料を提供し吸熱再構成化反応のための熱エネルギーを引き出し、これによって燃料電池の発熱電気化学反応による加熱により必要とされる燃料電池スタックの所望する冷却を提供することができる。本発明は特に高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適し、電解質からの再構成化触媒の分離を提供し、これは熔融アルカリカーボネートの場合には容易に触媒の力を無くす。

【0018】電解質、電極、集電装置およびセパレーター・プレートが、一直線に並ぶ多数のパーホレーション (穿孔) を所望の位置に有している。各セパレーター・プレートの穿孔は偏平なマニホールド・シール構造によって囲まれており、そしてそれは、セパレーター・プレートの面から該セパレーター・プレートの各面上の集電装置および/または電極に接触するまで延びていて、セパレーター・プレート/集電装置および/または電極シールを形成し、それが各穿孔を囲んで各穿孔を通してガス・マニホールドを形成し、そして電極スタックを通して延びている。延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール (穴) は、燃料マニホールドとセパレーター・プレートの一面上にあるアノード室との間にガス整流を供給し、そして、延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール (穴) は、オキシダント・マニホールドとセパレーター・プレートの反対面上にあるカソード室との間のガス伝達を可能にする。この構造により、燃料電池スタックにおける単位燃料電池の各々へ、および各々から、燃料およびオキシダント・ガスの内部マニホールディングが十分与えられる。同様に、炭化水素反応ガスおよび蒸気が燃料電池スタックを通じて散在するリホーミング室へ供給されるだろうし、そして、水素濃縮改質生成ガスが各リホーミング室から燃料マニホールドへ送られ、下流のアノード室へ供給される。

【0019】スタック末端プレートは、それらの内面上のセパレーター・プレートへ同様にして配設され、該燃料電池スタックの組の各々に供給し排出する手段が備えられている。末端のプレートの接続部分 (コネクション) におけるマニホールドの適当な組へ、および組から、燃料ガス、オキシダント・ガスおよび炭化水素反応ガスを供給し排出する外部手段は、いかなる従来技術手段によって備えてもよい。ここで「マニホールドの組」というのは、1またはそれ以上の燃料入口を形成する第1の組、1またはそれ以上の使用済の燃料排出口である第2の組、1またはそれ以上のオキシダント入口である第3の組、1またはそれ以上の使用済のオキシダント排出口である第4の組、そして1またはそれ以上の反応ガス入口の第5の組をいう。セパレーター・プレート、集

電装置、電極および電解質を通じて形成されている穿孔は、丸、正方形、長方形、三角形、または他のどんな所望の形や大きさであってもよい。そのような穿孔の各々は単一の穿孔として述べられているが、所望のガス分配を供給するには困難を生じるだろう。電池の活性領域の向こう側に所望のガス流量とパターンを供給するために、所望に応じて、電池構成要素を通して、任意の数のマニホールドを備えてよい。本発明では、少なくとも約0.25インチ離れた隣合うマニホールドのエッジ (縁) を有する各マニホールドで囲まれたセパレーター・プレートと集電装置および/または電極との間に直接シールを備えることが重要である。本発明はまた、セパレーター・プレートと集電装置および/または内部マニホールドの領域の外部にある電極との間に直接、連続する周辺シールを備える。

【0020】一つの好ましい実施例においては、本発明に係る分離板はプレスした薄い金属板であって、燃料電池の全作用領域に波状の部分および/またはくぼみが設けられていて、一つの面上に全周縁部と、分離板の反対側の面に溶接された薄い金属の直立したシール構造を有するマニホールドシール構造とが、プレスによって形成されており、それによって、分離板と、分離板の対抗する両面上のコレクタまたは電極との間に、全周縁部とマニホールドシールが設けられている。例えば棒状または帯板状の、粉末冶金法および類似の方法によって形成される延長したシール領域を設けるために、どのような構造を用いてもよい。一方の側にアノード電流コレクタおよび/またはアノードがあり、反対側にカソード電流コレクタおよび/またはカソードがある分離板の半組み立て品は、マニホールドと周縁のシール構造の領域内で金属製の要素を溶接またはろう接することによって製造することができる。

【0021】好ましい実施例においては、マニホールドとアノード室とカソード室さらにはリフォーム室の間のガスの流通を与えるための、延長したマニホールドシール構造を通る導通路または穴は、適当な波状にした金属によって形成される開口であるか、あるいは薄板金属または棒状構造を通る穴であってよい。

【0022】本発明は一つのガス導通路を隣接するガス導通路から確実にシールするものであり、それによって高温および腐食性の燃料電池、例えば溶接炭酸塩燃料電池スタックからの、完全に内部でマニホールドしたガスの供給と除去を行うための有効な手段を与える。また本発明の構造を用いることによって、マルチ電池スタックに炭酸塩を供給するための有効で様々な手段も得られる。

【0023】本発明の構造はまた、燃料電池スタックの中に散在する完全内部マニホールドリフォーム室をも与えるものであり、それによってアノード室に高品質化した水素燃料を供給する炭酸水素燃料ガスがリフォームさ

れ、また一方では、リフォーム反応を進め、燃料電池スタックを冷却するための電気化学的に生成された熱エネルギーを有効に利用するものである。

【0024】本発明は燃料電池要素、特に分離板の半組み立て品、アノード電流コレクタおよび／又はアノード、およびカソード電流コレクタおよび／又はカソードの、大量生産可能な形状を与え、また制御された条件下で実際の費用で製作できる。本発明の半組み立て品の使用によって、燃料電池スタックの組み立てが容易になり、また様々なサイズの燃料電池スタックのモジュール

【0025】本発明はまた、内部リフォームを伴う完全内部マニホールド燃料電池スタックを使用する、特に溶融アルカリ金属炭酸塩燃料電池スタックを使用する電気生成方法を与えるものである。

【0026】本発明の好ましい実施態様においては、燃料とオキシダントは完全内部マニホールド燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/505,293号に記載されるように流す。同様に、燃料、オキシダント、反応ガスおよび蒸気を完全内部マニホールドと内部改造燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/517,227号に記載されるように流す。これらの米国特許出願全体は本明細書の一部として引用する。また、これらの先行出願には、所望の完全内部燃料、オキシダント、反応物と蒸気および排出マニホールドと連動させて、一般に防流体性のアノード、カソードおよび改造チャンバーを提供する電解液と接触するように伸長する周辺ウェットシール構造と直立マニホールドウェットシール構造によって形成される電解液とセパレータープレート間のウェットシールしたセパレータープレート中のくぼみに取り付けた集電部と電極からなる発明の実施態様がより詳細に記載されている。この出願により詳細に記載されている態様は、セパレータープレートの周辺部に伸長する集電部と電極からなっており、これによって製造許容範囲が広がり、セパレータープレート、集電部と電極のサブアセンブリーをより実際のなものにしている。この出願により詳細に記載されている態様においては、ウェットシールは、周辺シール部と各内部マニホールドを囲むシール部分の、電解液と集電部および／または電極間にある。

【0027】本発明は、完全内部マニホールド燃料セルスタックに関するものである。好ましい実施態様においては、電解液タイル、電極、集電部およびセパレータープレートはそれぞれ配列したマニホールドダクトによって透過されている。これらの要素は皆ほぼ同じ大きさの、セル周辺かその近辺にまで伸長する集電部と電極である。これらの態様によって、セパレータープレートのくぼみ内に電極と集電部を密にフィットさせることが要求される強い許容性の問題を解決している。これらの態様はまた、アノード／集電部／セパレータープレート／

集電部／カソード集積ユニットのサブアセンブリーをより簡単かつ実用的にしている。これらの要素のプレアセンブリーは、あらかじめ構成したサブアセンブリーと電解液へのスタック要素の数をかなり少なくすることによって燃料セルスタックのアセンブリーをかなり機能的にしている。本発明では、セパレータープレートの一面から伸長する圧縮シール部とセパレータープレートの反対面から伸長する薄いシートフォームを有する薄いシートセパレータープレートを用いて、マニホールドと周辺シール部を形成するのが好ましい。この薄いシートシール部はフレキシビリティとレジリエンスを制限して密閉するものである。

【0028】本発明の燃料セルスタックは、本明細書の一部として引用される上記の先行出願により詳細に記載されるように、燃料とオキシダントガスをセルスタックの十分に内部に流す。先行出願に記載されるように、セルセパレータープレートとともにセルのエッジに伸長する電極の角の部分にマニホールドホールを設けてもよい。電極の周辺部の回りにあるそれぞれの面上にある通常のウェットシールを形成する各面上のセパレータープレートと電解液間の接触によって、液体を封じ込めている。マニホールドホールとアノードとカソード区画の間の液体流通を可能にする所望のオープニングを通して、電解液とセパレータープレートの間の通常のウェットシールでマニホールドホールをシーリングしながら所望のガス流通を行ってもよい。この出願により詳細に記載される態様は、セパレータープレートの周辺部に伸長する集電部と電極を有し、集電部と電極のマニホールドホールをマッチングさせることを要し、従来法として記載される態様におけるように電解液とセパレータープレートとの間ではなくて電解液と電極との間のウェットシールを行う。

【0029】分離プレート、電解液タイル、電極及び電流コレクターにおける調和マニホールド孔は、ガスの供給及び排出用の燃料電池スタックの全高さにわたって連続しているマニホールド導管を形成する。本発明は、燃料電池スタック中の全電池へ内部的に伸びているマニホールド導管が単一の外部開口から供給されるものであり、一方従来の外部的にマニホールドされた燃料電池スタックは、各独立した燃料電池へ向かって又はそれからの外部開口を必要としていた。ガスは、1つの半電池として作動するエンドプレートを通して燃料電池スタックへ供給され、そして他の半電池として作動する同様のエンドプレートを通して排出される。

【0030】流体が燃料電池スタックへ供給され、又それから取り出される方法は、広範囲のバリエーションにおいて行われる。ガスシーリングは、各個の電池内及び燃料電池スタックに散在するリフォーミング室内の望ましい位置にガスを導入するのに適するように、分離プレート周辺と各ガスマニホールド領域との両方において、

電解液タイルと電極との間のシーリングにより通常の方法で、達成される。ウェットシールは、分離プレートの両側上にある類似の直立シール構造物によって、これらの領域に形成される。

【0031】各先願の図1に示されるように、電解液20及び分離プレート40は電池の外側端まで延びて、ウェットシール領域23における周囲のあたりでお互いにシールされている。独立した熔融炭酸塩燃料電池ユニットはアノード26とともに示されており、そのアノードは分離プレート40の一面から離れており、矢印38によって示されているように燃料マニホールド孔24により供給されるアノード室を形成する。分離プレート40の他面には、カソード27が分離プレート40から離れて設けられ、矢印39により示されるようにオキシダントマニホールド孔25と連結してカソード室を形成する。電解液20及び分離プレート40は、周辺ウェットシール領域23を形成する電池の外端まで延び、その領域が電解液と流体封じ込め用の分離プレートとの間の周辺ウェットシールを形成する。燃料マニホールドウェットシール領域45及びオキシダントウェットシール領域46は、電解液/分離プレートウェットシールによりマニホールドシーリングを形成し、分離プレート40の反対側にあるアノード及びカソード室への流体の望ましい導入を行う。如何なる追加のガスケットもシーリングのために使用されず、又この電池ユニットは炭酸塩テープも包含する広範囲な種類の炭酸塩添加技術に適用することができる。

【0032】本願の図1（正確な縮尺率で書かれていない）は、本発明の一つの態様に従った周辺シール部分の詳細を示すものであり、薄いシートセパレーター板40は、穿孔30を有するカソード27の集電装置28に隣接して波形の一面上にピークをもつ波形にされており、該電池のカソード面上にカソード集電装置28に隣接して置かれている。平らな薄いシートのセパレーター板周辺シール部分44をもつように形成されている。薄い金属ストリップ材から形成されたセパレーター板シールストリップ41は、溶接点42で溶接されているか、もしくはセパレーター板40のアノードに付設させて、該電池のアノード側に穿孔31を有するアノード26の集電装置26に隣接して設置されている平らなセパレーター板シールストリップ周辺シール部分43を与える。

【0033】セパレーター板及びシールストリップの位置は、逆にされても良く、セパレーターシールストリップシール部分43とセパレーターシール部分44の間隔は、個々の電池の必要とする間隔に合うように形成されることは、極めて明らかである。該電池の構成部材の各々は、ほぼ該電池の周辺に伸びているが、セパレーター板の立上り部分により形成されるウェットシール部分において電解液と電極及び/又は集電装置との間のウェットシールを形成するシール部分43と44の十分な重複

がある限り、ここでは寸法は臨界的ではない。類似のウェットシールは、セパレーター板の各々の側で類似の立上りシール構造により、各々のマニホールドの周囲に形成される。電池操作条件下で電極を通る電解液の漏れを防止するために、ウェットシールの部分において、多孔性電極は、ろう付材の如き、高融点材料で充填される。電池スタックが共にしっかりと締められる時、セパレーター板の周辺の周囲と内部マニホールドの各々の周囲のセパレーター板の両面に、立上りウェットシール部分からの圧により、ウェットシールが形成される。

【0034】我々は、広いウェットシール部分機能よりも、狭いウェットシール部分機能が良いことを見出した。立上りウェットシール部分は、セパレーター板と同じ薄い材料、約0.010-0.050インチ、好ましくは約0.015-0.025インチで構成されることが望ましい。又、漏れの原因となるたるみや曲がりやすさを避けるために、約1インチより小さい幅に限定することを見出した。立上りウェットシール構造物の幅は、好ましくは約0.25-0.75インチで、内部ブリッジングや支持の必要性をなくせる。さらに、我々は、幅1インチ以下のウェットシールは、電解質マトリックスにおける良好な炭酸塩電解質保持をさせる電池昇温間に、グリーン電解質マトリックステープから有機質バインダーの、必要な十分な除去を与えることを見出した。約1インチを超えるウェットシール幅は、電池操作間に漏れがちなウェットシールに導く、残留する炭素質材料や少量の炭酸塩電解質が存在することになる。再び、追付のガスケットはシールのために用いられることはなく、又該電池ユニットは炭酸塩テープの使用を含め、追加の炭酸塩技術の広い変化に適用できる。

【0035】炭酸塩テープを用いるときには、炭酸塩テープ及び電解質マトリックスは、セルエッジに向けて伸びている。そして、インターセルスペーシングは、炭酸塩テープが溶融すると、該炭酸塩テープの厚さに比例して減少するが、シーリングとセルコンポーネント全体の組み立ては常時維持される。炭酸塩テープが溶融する前にセルをヒートアップする間、マニホールドホール24及び25のそれぞれのまわりは、シール状態が維持される。この理由は、炭酸塩テープ及び電解質マトリックス、例えばLiAlO₂が、隣接するシール面に向かっており、しかも、ゴム状のバインダーを含有しているからである。バインダーが燃え尽きる間、ガスの流れは維持され、そしてシールが得られる。なお、バインダーが燃え尽きるのは、炭酸塩が溶融する前である。バインダーが燃え尽きて、セルの温度が上昇して炭酸塩の融点になったとき、溶融炭酸塩は多孔質LiAlO₂テープ及び電極に吸収される。内部セルスペーシングは、炭酸塩テープが溶融してその間隔が減少するが、室温から作動温度である約650℃までシールは保持される。シール部分にある薄い金属シートが有する、制限された柔軟性

と戻り性によって、セルのシールは更に確実となる。

【0036】図2は、本発明の一態様に従う熔融炭酸塩燃料電池スタックの燃料電池ユニットの斜視分解図である。図2において、40はセパレータプレート、27はカソード、28はカソード集電体、20は電解質、26はアノード、29はアノード集電体である。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20は、セルの周辺部分にまで伸びており、セパレータプレート40の両面においてウェットシールを形成する。つまり、電解質20とカソード27及び／又は集電体28との間、そして、電解質20と、アノード26及び集電体29との間において、ウェットの周縁部全体にわたってウェットシール43が形成される。周縁部のウェットシール構造43は、セパレータプレート40の面から上方及び下方に伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面は、集電体及び／又は電極の周縁部と接触することになる。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20には、それぞれ、対応する位置に燃料用マニホールドホール24とオキシダント用マニホールドホール25が設けられている。それぞれのマニホールドホールは、一方が供給用のホールであり、他方が排気用のホールである。図2に示すように、マニホールドホールは、好ましくは三角形をしている。これは薄いシートから容易にマニホールドシール領域を形成できるからである。しかしながら、マニホールドホールは、円形や矩形その他の形状でもよい。図2に示すマニホールドホールは一つの開口部となっているが、例えば、セルの反応チャンパー中を流れるガス流を制御するために開口部にパーティションを設けてもよい。燃料用マニホールドウェットシール領域45及びオキシダント用マニホールドウェットシール領域46は、セパレータプレート40の上方及び下方に向かって伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面において、集電体及び／又は電極と接触することになり、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極との間でウェットシールを形成する。なお、周縁部のウェットシールの場合と同様に、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極はガス導管を形成する。

【0037】図2に一番よく表されている通り、オキシダントマニホールド孔25はオキシダント流れをカソード室（示されている通り分離板の上面に隣接している）にのみ及びオキシダント流れをカソード室から提供するオキシダントマニホールドウェットシール46によってシールされる。このカソード室はオキシダント供給開口48及びオキシダント排出開口48'の近くにあり、このシール46はガスがアノード室に又はアノード室から流れるのを回避している。一方、燃料マニホールド孔24は燃料マニホールドウェットシール45でシールされ、このシール45は燃料流れをアノード室（示される

いる通り分離板の下面面に隣接する）のみに流し、及びアノード室から流し、このアノード室は燃料供給開口47及び燃料排出開口47'の近くにあり、このシール45はガス流れがカソード室に又はカソード室から流れるのを回避している。マニホールドウェットシールはストレータプレスされたシート金属構造として示されるが、それらはガス流れを回避するためにあらゆる望ましい形又は構造をとることができる。このマニホールドウェットシールは燃料マニホールド孔24とオキシダントマニホールド孔25の間に二重のウェットシールを形成する。

【0038】分離板40は望ましい物理的強度及びガス分離を提供する適当な物質からなってもよい。この分離板は望ましくは非常に薄く、約0.010〜0.050インチの厚さであり、好ましくは、約0.015〜0.025インチの厚さである。多くの電池スタックでは、バイメタル分離板を使用することが好ましく、第一鉄金属腐食を避けるため、カソード面にステンレス鋼をアノード面にニッケル又は銅を使用できる。このニッケル又は銅は分離板の厚さの10%をクラッドし、積層し又はめっきである。分離板はタイプ300シリーズのステンレス鋼のような第一鉄合金から二次加工もまたできる。この分離板はガス室非反応性分離器を提供するのと内部負荷支持部材としての燃料電池への構造的強度を提供するのとの二つの機能を提供する。電極に隣接してガスの好循環及び強度の両方をするために活性面積内の波形及び／又はえくぼを有する横断面形有する分離板を使用することが好ましいが、本発明の原理は、周囲のシール域を提供し、内部マニホールド孔の周りにシールを提供すると同時に燃料電池操作で要求されるようにガスを内部マニホールドへ通し、及び内部マニホールドからガスを通す構造の水平な分離板にもまた適用できる。

【0039】薄くスタンプされたスタンプ鋼板は、American Heat Reclaiming Corp.(1270 Avenue New York 100 20, NY)による刊行物"Modern Designs For Effective Heat Transfer"及びTranter Inc.(Wichita Falls, Texas 76307)による"Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger"で示される熱交換技術に利用されている。これらの熱交換器は一連のエンボスされたガスケツト又は板の一面上の熱媒体の通路用の溝を提供する末端フレーム及び板の他の面上の冷媒体の通路の間で一緒にボルト締めされたプレスされた金属板を使用する。しかしながら、燃料電池スタック分離板は非常に異なる問題、シーリング及び熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池操作条件下における腐食の問題、異なるマニホールド配置、シーリング及び流体連通手段の問題（二つの流体は分離した関係で隣接する分離体の間を通過しなければならないので）を提供している。熱交換では、ひとつのみの流体が隣接する熱交換板の間を通過する。しかしながら、本発明のこの燃料電池スタックの電極を流れる流体流れの技

21

術はデザイン技術及び渦巻き模様、洗濯板、直線波形及び混合波形のような熱交換器の原型を有利に利用できる。

【0040】我々のセバレータプレートの両側における同方向の流れ及び対向方向の流れに関する先行出願においてより詳細に記述され且つ示されている本発明のセバレータプレートの実施態様に加えて、図4に本発明に有用な別のセバレータプレートが示されている。図4に示されているセバレータプレートには4つの同様な繰返し域が設けられており、商業的に実施可能な最大面積のセル、例えば10,000cm²すなわち約34×57in²程度のセルとするときには望ましいガス流を提供できる。図4にはセバレータプレート240が示されている。このとき、燃料供給用のマニフォルド型孔224から燃料は矢印で示されているようにアノードチャンバーを通過し活性領域を横断して燃料の欠乏したマニフォルド型孔224Aに向かう。オキシダントはオキシダント供給用マニフォルド型孔225を通過してセバレータプレート240の反対側に供給され、そして、カソードチャンバーを通過しオキシダントの欠乏したマニフォルド型孔225Aに向かう。電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール246はマニフォルド型孔を封止しており、その結果として流体の漏れが防止される。同様に、電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール223はセルの全周を封止している。図4では、本発明に係わる大規模な燃料電池のスタック用に適している集電装置の1つの形状が示されている。なお、その他の多くの形状も同様に適していることは理解されたい。

【0041】図3には、図2に示されたユニットセルを備えた燃料電池のスタックの実施態様の1つが示されている。ここでは、燃料電池の軸方向に沿って内部に分散させるのに適当なリフォーミングチャンバーが備えられている。リフォーミングチャンバーは、アノードセバレータ／リフォーマプレート40"とカソードセバレータ／リフォーマプレート40'との間に設けられる。セバレータプレート40、カソード27、カソードカレントコレクター28、電解液20、アノード26及びアノード集電装置29は図2に関して説明されたものと類似しているが、反応ガス用マニフォルド型孔50に関しては異なっている。反応ガスのマニフォルド型ウェットシール領域51は、セバレータプレート40の一般的な(general)平から両方の面上に伸びており接触して電解液20と隣接する電極との間でウェットシールを形成せしめ、反応ガス用のマニフォルド型孔の境界を定めている。オキシダント及び燃料用のマニフォルドに関してはこのことは既述されている。反応ガス用マニフォルド型孔50の直径はセルのそれぞれの部品のものと同じであり、反応ガスのマニフォルド型ウェットシール領

22

域51の平らな面が一方の側で電解液20とカソード27及び／又はカソード集電装置28との間で接触をし、且つ、電解液20とアノード26及び／又はアノードカレントコレクター29との間で接触をし、反応ガスのマニフォルドを囲うウェットシールを形成する。セバレータプレート中における伸びている反応ガス用マニフォルド型ウェットシール領域の側面は固体であり、それ故、反応ガスのアノードチャンバー又はカソードチャンバーへの流入が阻止される。アノードセバレータ／リフォーマプレート40"は、セバレータプレート40中にあるオキシダント供給開口48及びオキシダント欠乏開口48'とが含まれず、且つ、その結果として、アノードセバレータ／リフォーマプレート40"の上面に近接したリフォーマーチャンバーはいずれのオキシダントマニフォルドとも連通していないという点においてのみセバレータプレート40と異なる。伸びている反応ガスのマニフォルド型ウェットシール領域51の側面における反応ガス開口53は、反応ガスのマニフォルド50とリフォーマーチャンバーとを連通させる。同様に、カソードセバレータ／リフォーマプレート40'の下側は、伸びている古い燃料用マニフォルド型ウェットシール領域45の固体側面を備えるように改変して、古い燃料マニフォルド24とリフォーマーチャンバーとの間をブロック連通させる。このとき、古い燃料用マニフォルド24は備えられていない。反応ガス供給用開口53は、反応ガスマニフォルド50とアノードセバレータ／リフォーマプレート40"とカソードセバレータ／リフォーマプレート40'との間に形成されているリフォーマーチャンバーとの間を連通させる。標準的なセバレータプレート40'にこれらの改変を加えて、完全に内部がマニフォルド型になっている反応ガス部及び流れ供給部を備えたリフォーミング反応チャンバーは、燃料電池のスタック内に望ましい間隔を置いて点在させてもよい。既に詳述したのと同様に、セバレータ／リフォーマプレートを前以て組み立てて、対応する電極及び集電装置を備えたセバレータ／リフォーマプレートのサブアセンブリを形成してもよい。

【0042】燃料電池スタックが組み込まれた時、周囲のウェットシール領域とアノードセバレータ／リフォーマー板40"のすべてのウェットシール領域はカソードセバレータ／リフォーマー板40'から伸びる対応するウェットシール領域と接触し、強固な金属／金属シールを形成し、このシールはウェットシール領域での限られた柔軟性と弾性のために、マニフォルドを板40"と40'の間の空間により形成されるリフォーマー室から効果的にシールする。所望の場合には、リフォーマー室を形成する伸ばされたウェットシール領域をさらにセバレータ板40上まで伸ばし、セバレータ／リフォーマー板の間の空間をより大きくし、リフォーマー室の体積をより大きくすることができる。所望の場合にリフ

ォーマー室の体積を大きくするもうひとつの方法は、横壁を溶接によりマニホールドウェットシール領域と周囲のウェットシール領域のそれぞれまで伸ばすことであり、そのようなセパレーター／リフォーマー板までの延長によりリフォーマー室の深さを所望の深さにでき、一方、リフォーマー室の締切りとリフォーマー室を通る所望のマニホールドのシールされた通路を与える。リフォーマー室が上記のように補足的に深くされた場合、金属製導電性ビラーをセパレーター／リフォーマー板の間の所望の位置に設けることができ、リフォーマー室構造に弾性を付与し、導電性を付与することができる。同様な方法で、対応する電流コレクターと電極を含む全体のリフォーマー室構造が、燃料電池スタックの組み立ての前

【0043】軸方向に複数のリフォーミング室が散在する燃料電池スタックの基本的な構成は、それぞれのリフォーミング室が2つの離れたセパレーター／リフォーマー板により形成され、1つはアノード室に面したセパレーター板の面の外側に位置し、2つめはカソード室に面したセパレーター板の他方の面の外側に位置し、2つのセパレーター／リフォーマー板はそれらの端部分で密封した状態で接合され、リフォーマー室、伸ばされたマニホールドウェットシール構造を通る、反応ガス供給マニホールドとリフォーマー室とを連結する反応ガスと水蒸気の配管、および伸ばされたマニホールドウェットシール構造を通る、燃料ガス供給マニホールドとを連結する水素富化生成ガスの配管を囲い込み、反応ガス、水蒸気、および燃料電池のそれぞれのリフォーマー室からの生成ガスの完全な内部マニホールディングをもたらす。

【0044】支持されたニッケルのような通常のリフォーミング触媒は石炭、シェールのような天然で生じた有機炭化水素物質のガス化によって又は無気消化によって得られた天然ガス又は燃料のような炭化水素物質から水素の製造のための公知の蒸気リフォーム反応の実施のためリフォーム室内において使用できる。メタン含有ガス源は反応性炭化水素物質ガスをリフォーム室に供給するために使用できる。

【0045】矢印で示されているように、炭化水素質反応ガス及び蒸気は、反応性ガスマニホールド50からリフォーム室に供給され、そのリフォーム室内のリフォーム触媒の上を通過し、燃料供給マニホールド24内に直接に通過されるその生成物ガスの水素含有を高める。この方法において、その燃料供給マニホールドを通過する燃料の水素含量はその電池の軸に沿って高められる。

【0046】本発明によって実施されるような燃料電池スタックを完全に内部マニホールドする能力は、電気化学的ユニット燃料電池を所望により冷却しながらそして高められた水素燃料をその電池スタックの軸に沿ってその燃料供給マニホールドに提供しながらそのリフォーム反応を実施するために電気化学的に発生した熱を利用す

るその燃料電池スタック内において、リフォーム室の散在を許容する。その燃料電池電極からそのリフォーム室の分離は、溶融炭酸塩電解質によって通常のリフォーム触媒がだめになるのが避けられる。その燃料電池スタック内の炭化水素物質のリフォームと一緒にその完全に内部マニホールドされた燃料電池セルは改良された全燃料を電気セル効率に提供する。本発明に依れば天然ガスは、上述のように各約5〜10の電気化学的ユニットセル間にリフォーム室を配置することによってその電気化学的応用の高められた水素燃料を提供するために反応体として使用できる。

【0047】リフォーム室の使用は、図2に示されるようなセパレートプレート配置に関して上記に記載されたけれども、上記に記載した方法と同様の方法でリフォーム室に連通する反応性ガスマニホールドとして内部マニホールドの或る種のものの消化によって広範囲なセパレートプレート配置に適用できる。本発明による内部リフォーム室を提供する本質的な要素は、所望のように配置されそしてそのエンドプレート(end plate)を通してのみ外部供給及び排出管に接続できる内部マニホールドを通して燃料供給及び排出、オキシダント供給及び排出及び反応性ガス供給を提供する完全に内部マニホールドされた燃料電池スタックである。

【0048】電解質／電極及び／又は電流コレクターウェットシールの使用により、その燃料マニホールドとそのセパレタプレートのアノード面のみ間の及びそのオキシダントマニホールドとそのセパレタプレートの反対カソード面のみ間の連通は、外部マニホールドが使用される時本質的であるような多孔質ガスケットなしに達成できる。その主要なウェットシールはその電解質及びその電極間であるけれども、その電解質と幾分かの区域においてその電極を越えて伸びる電流コレクターと間に幾分かのウェットシールが存在していても良くそしてそのシール区域がその電極コレクター又は電極によって完全にカバーされない場合においてその電解質とそのセパレタプレートのシール区域間に幾分かのウェットシールが存在していても良い。さらにリフォーム室は上述のようにその燃料電池スタックの軸に沿って散在できる。さらに各各ガスマニホールドシール区域は、腐食性及び他の吸上作用処理を減らすためにアルミニウム化できる。

【0049】本発明の、内部が完全にマニホールド型になっている電池を使用すると、工場の組み立て場において、カーボネート・テープの溶融によって電池間の距離の変化が生じ、一旦このような溶融が起こると、電池間距離はそれ以上変化することはない。工場から搬出される電池スタックの高さは、使用場所において圧力容器の中で運転している間中同じである。改質チャンバーの高さは、始動時または燃料電池運転中に変化しない。従って、燃料電池スタック運転中には、活性部分およびシー

ル部分において電池を支える力を維持するために必要な継続管理のみが必要である。

【0050】本発明の電池形状および電池スタックの利点を、主として熔融カーボネート電池質燃料電池に関して述べて来たが、これらは固体酸化物電解質における酸素イオン又は酸素空隙あるいはその双方の移動によって内部の電気的条件を与える固体導電体／固体電解質燃料電池その他の高温燃料電池に容易に応用することができる。イットリウムでドーピングしたジルコニア、酸化物イオンを伝導する様々なパーブスカイト化合物、および固体陽子導電体（例えばイッテルビウムでドーピングしたバリウム珪素）等の、多くの適当な固体酸化物電解質が知られている。本発明の燃料電池スタック形状は、特にこれらのタイプの固体導電体／固体酸化物燃料電池において有用である。

【0051】前述の明細書において本発明を一定の好ましい具体例と関連して述べ、例証のために多くの詳細を述べて来たが、当業者には、本発明に従ってさらに具体例を追加できることが明かだろう。

10

*

*【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の1実施態様に従う燃料電池の周辺のウェットシール領域の側断面図である。

【図2】図2は、本発明の1実施態様に従う燃料電池スタックの単一電池ユニットの分解斜視図である。

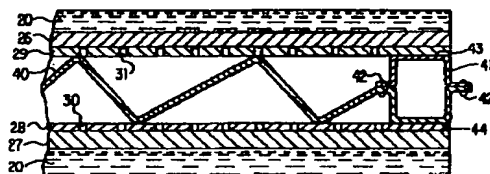
【図3】図3は、本発明の1実施態様に従う内部リフォーミング室をもつ燃料電池スタックの一部略分解斜視図である。

【図4】本発明に従うマニホールドを十分に設けた燃料電池スタックのマニホールドプレートの別の実施態様の正面図である。

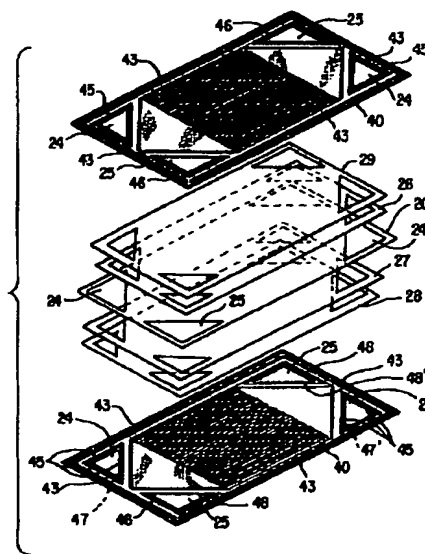
【符号の説明】

- 20 電解質
- 26 アノード
- 29 アノード集電体
- 40 セパレータプレート
- 30, 31 孔
- 28 カソード集電体
- 27 カソード

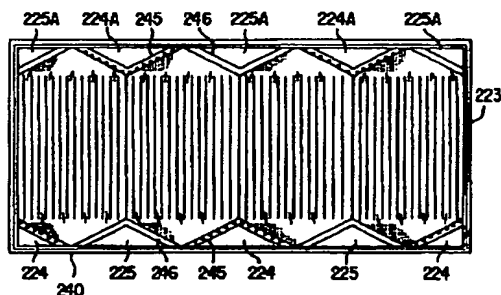
【図1】



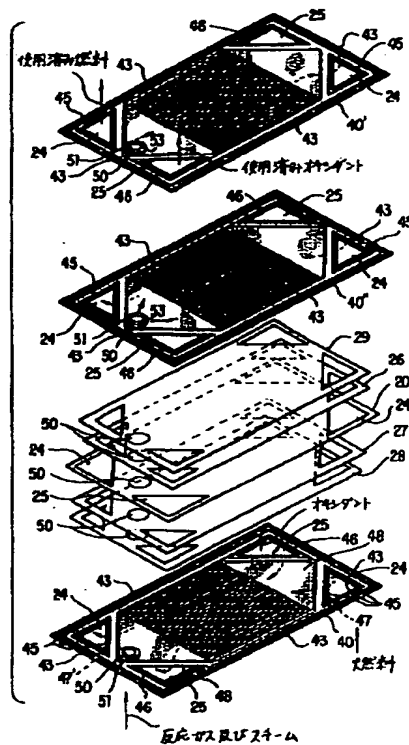
【図2】



【図4】



【図3】



【手続補正書】

【提出日】平成4年10月2日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池ユニットから成り；各燃料電池ユニットはアノード及びカソード、該アノードの電解質対向面と一方の面で接しかつ該カソードの電解質対向面と他方の面で接している電解質、並びにアノードとカソードとの間でそれら燃料電池ユニット同士を分離するセパレーター板にして、セパレーター板のアノード対向面と該アノードとの間にアノード室を形成すると共にセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットの該カソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り；該アノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通し、該カソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している燃料電池スタックにおいて：該電解質及び該セパレーター板は該燃料電池スタックの周縁領域

まで延在しており；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、それらの各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな周囲ウェットシール構造を有して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウェットシールを形成しており；該電解質及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホールドウェットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホールドウェットシールを形成して、該電池スタックを貫いて延在する複数の気体マニホールド、該延在マニホールドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一组の該マニホールドと該アノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホールドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二の該マニホールドの組と該カソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成し、それによって該燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与える；ことを改良点とする

前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 燃料電池スタックにその軸に沿って、それぞれが2つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーマー室が配置されており；該セパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の1つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そして該セパレーター／リホーマー板の他方はカソード室の1つに対面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し；該2つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封接合されてリホーマー室、延在マニホルドウエットシール構造を貫いて第3のマニホルドの組から該リホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与える導管、並びに延在マニホルドウエットシール構造を貫いて燃料ガス供給マニホルドへの水素富化生成ガスの連通を与える導管を包囲しており、それによって燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応ガス及びスチームの、並びに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホルドシステムを与える、請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 セパレーター板及びセパレーター／リホーマー板が約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に延在周囲ウエットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在周囲ウエットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 セパレーター板の一方の面上の延在マニホルドウエットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に該延在マニホルドウエットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在マニホルドウエットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 リホーマー室が約5～約10個の隣接燃料電池ユニットから成る群の間に配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 セパレーター板が厚さ約0.010～約0.050インチのプレス加工金属板である、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 ウエットシールの幅が約1/4～約3/

4インチである、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 アノードに面する側のセパレーター板がニッケル及び銅から成る群より選択された金属で被覆又はクラッドされている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 電解質が固体イオン導体／固体酸化物化合物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 電解質がアルカリ金属カーボネートから成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 電解質がカーボネートテープ及びマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている、請求項12に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 アノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置されている、請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 集電装置が燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項15に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 平らな周囲ウエットシール構造がセパレーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して、電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウエットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 電解質、アノード、カソード、集電装置及びセパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウエットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウエットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項19】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在し；該アノード及び該カソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置され、該集電装置は燃料電池スタックの該周囲縁部領域まで延在し；平らな周囲ウエットシール構造が該セパレーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウエットシールを形成しており；そして該電解質、該アノード、該カソード、該集電装置及び該セパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな該マニホルドウエットシール構造により取り囲

まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホールドウェットシールを形成している、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項20】 アノード、セパレーター板及びカソードを含んで成る燃料電池ユニット用のサブアセンブリーにして、

該燃料電池ユニットは燃料電池スタックの縁部領域まで延在する該アノード、該カソード及び該セパレーター板を有し；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、その各面から延在する幅約1インチ未満の平らな周囲ウェットシール構造を有し；該アノード、該カソード及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該穿孔、該延在マニホールドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一組のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホールドウェットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二のマニホールドの組とカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管の周囲全体にわたって該セパレーター板の各面から延在する幅約1インチ未満の平ら*

*なマニホールドウェットシール構造により取り囲まれており、それによって燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与え、かつ該アノード、該セパレーター板及び該カソードを各々の密封領域において密封接合している；前記サブアセンブリー。

【請求項21】 密封接合が溶接である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項22】 セパレーター板及びウェットシール構造が該ウェットシール構造の平らな部分において約0.010〜約0.050インチの厚さで、かつ約1/4〜約3/4インチの幅である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項23】 集電装置がアノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間にある、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項24】 集電装置が燃料電池スタックの縁部領域まで延在している、請求項23に記載のサブアセンブリー。

フロントページの続き

(72)発明者 フランク・シー・ショーラ
アメリカ合衆国イリノイ州60067, バラティン, オールド・ブラム・グローブ・ロード 5500

(72)発明者 ランディー・ジェイ・ベトリ
アメリカ合衆国インディアナ州46322, ハイランド, イーダー・ストリート 3223
(72)発明者 マーク・ジー・ロウソン
アメリカ合衆国イリノイ州60402, バーウィン, ケニルウォース・アベニュー 3644

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載
 【部門区分】第7部門第1区分
 【発行日】平成11年(1999)4月9日

【公開番号】特開平6-163063
 【公開日】平成6年(1994)6月10日
 【年通号数】公開特許公報6-1631
 【出願番号】特願平4-214481
 【国際特許分類第6版】

H01M 8/02

【F I】

H01M 8/02 S
 B
 R

【手続補正書】

【提出日】平成4年10月2日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池ユニットから成り；各燃料電池ユニットはアノード及びカソード、該アノードの電解質対向面と一方の面で接しかつ該カソードの電解質対向面と他方の面で接している電解質、並びにアノードとカソードとの間でそれら燃料電池ユニット同士を分離するセパレーター板にして、セパレーター板のアノード対向面と該アノードとの間にアノード室を形成すると共にセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットの該カソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り；該アノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通し、該カソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している燃料電池スタックにおいて：該電解質及び該セパレーター板は該燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、それらの各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな周囲ウエットシール構造を有して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウエットシールを形成しており；該電解質及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電解質の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウエットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウエットシールを形成して、該電池スタックを貫いて延在

する複数の気体マニホルド、該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一組の該マニホルドと該アノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二の該マニホルドの組と該カソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成し、それによって該燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホルドシステムを与える；ことを改良点とする前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 燃料電池スタックにその軸に沿って、それぞれが2つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーマー室が配置されており；該セパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の1つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そして該セパレーター／リホーマー板の他方はカソード室の1つに対面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し；該2つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封接合されてリホーマー室、延在マニホルドウエットシール構造を貫いて第3のマニホルドの組から該リホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与える導管、並びに延在マニホルドウエットシール構造を貫いて燃料ガス供給マニホルドへの水素富化生成ガスの連通を与える導管を包囲しており、それによって燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応ガス及びスチームの、並びに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホルドシステムを与える、請求

項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 セパレーター板及びセパレーター／リホーマー板が約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に延在周囲ウエットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在周囲ウエットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 セパレーター板の一方の面上の延在マニホルドウエットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に該延在マニホルドウエットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在マニホルドウエットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 リホーマー室が約5～約10個の隣接燃料電池ユニットから成る群の間に配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 セパレーター板が厚さ約0.010～約0.050インチのプレス加工金属板である、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 ウエットシールの幅が約1/4～約3/4インチである、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 アノードに面する側のセパレーター板がニッケル及び銅から成る群より選択された金属で被覆又はクラッドされている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 電解質が固体イオン導体／固体酸化物化合物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 電解質がアルカリ金属カーボネートから成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 電解質がカーボネートテープ及びマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている、請求項12に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 アノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置されている、請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 集電装置が燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項15に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 平らな周囲ウエットシール構造がセパ

レーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して、電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウエットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 電解質、アノード、カソード、集電装置及びセパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウエットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウエットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項19】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在し；該アノード及び該カソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置され、該集電装置は燃料電池スタックの該周囲縁部領域まで延在し；平らな周囲ウエットシール構造が該セパレーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウエットシールを形成しており；そして該電解質、該アノード、該カソード、該集電装置及び該セパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな該マニホルドウエットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウエットシールを形成している、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項20】 アノード、セパレーター板及びカソードを含んで成る燃料電池ユニット用のサブアセンブリーにして、

該燃料電池ユニットは燃料電池スタックの縁部領域まで延在する該アノード、該カソード及び該セパレーター板を有し；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、その各面から延在する幅約1インチ未満の平らな周囲ウエットシール構造を有し；該アノード、該カソード及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該穿孔、該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一組のマニホルドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二のマニホルドの組とカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管の周囲全体にわたって該セパレーター板の各面から延在する幅約1インチ未満の平らなマニホルドウエットシール構造により取り囲まれており、それによって燃料電池スタック中の各ユニット燃料

電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与え、かつ該アノード、該セパレーター板及び該カソードを各々の密封領域において密封接合している；前記サブアセンブリー。

【請求項21】 密封接合が溶接である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項22】 セパレーター板及びウェットシール構造が該ウェットシール構造の平らな部分において約0. *

*010～約0.050インチの厚さで、かつ約1/4～約3/4インチの幅である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項23】 集電装置がアノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間にある、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項24】 集電装置が燃料電池スタックの縁部領域まで延在している、請求項23に記載のサブアセンブリー。

【手続補正書】

【提出日】平成5年11月18日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正内容】

【書類名】 明細書

【発明の名称】 完全内部マニホールド付き燃料電池スタック

【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池単位を含んで成る燃料電池スタックにして、

各燃料電池単位はアノードとカソード；該アノードの電解質に面する面と1側面で接触し、かつ該カソードの電解質に面する面と反対側の側面で接触している電解質；及び該燃料電池単位をアノードとカソードとの間で分離するセパレーター板にして該セパレーター板のアノードに面する面と該アノードとの間にアノード室を形成し、かつ該セパレーター板のカソードに面する反対側の面と、1つの隣接する該燃料電池単位のカソードのセパレーターに面する面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り、

該アノード室は燃料ガスを供給、流出させることができるように気体連通されており、そして該カソード室はオキシダントガスを供給、流出されることができるように気体連通されている該燃料電池スタックにおいて、該電解質と該セパレーター板が該燃料電池スタックの周辺端縁まで延在しており；該セパレーター板は、それらセパレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在し、それらの周辺を完全に囲んで、運転条件下で約1インチ幅より狭いセパレーター板／電解質ウェットシールを形成している平らにされた周辺ウェットシール構造体を有し；該電解質と該セパレーター板とは各々複数の整列された穴を有し、該セパレーター板の該穴は、該電池スタックを通して延在する複数のガスマニホールドを形成するように電池の運転条件下で約1インチ幅未満のセパレーター板／電解質ウェットシールを形成している、該セパレーター板の各面上

で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在している平らにされたマニホールドウェットシール構造体で包囲されており；該延在マニホールドウェットシール構造体を通る導管が1組の該マニホールドと該アノード室との間で該セパレーター板の1つの面上において燃料ガスを連通させるようになっており；そして該延在マニホールドウェットシール構造体を通る導管が該マニホールドの第2の組と該カソード室との間で該セパレーター板の他の面上においてオキシダントガスを連通させるようになっており；それによって燃料ガスとオキシダントガスとを該燃料電池スタック中の該各单位燃料電池に及び該各单位燃料電池から完全に内部マニホールドするようになっており；ことを特徴とする前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタックの端板が該セパレーター板とそれらの内面上で同じに適合され、該燃料電池スタックの各端部上で半電池を形成している請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 該燃料電池スタックにその軸に沿って、2枚のセパレーター／リホーマー板で各々形成されている複数のリホーミング室が所定間隔で配置されており；1つのセパレーター／リホーマー板は該アノード室の該セパレーター板に面する面の該アノードに面する面の形状を有し、第2のセパレーター／リホーマー板は該カソード室の該セパレーター板に面する面の該カソードに面する面の形状を有し；2枚の該セパレーター／リホーマー板はそれらの端縁領域においてリホーマー室を取り囲むように接合、封止されており；該延在マニホールドウェットシール構造体を通る複数の導管が反応ガスとスチームを第3の組の該マニホールドから該リホーマー室に連通させ；そして該延在マニホールドウェットシール構造体を通る複数の導管が水素に富む生成ガスを燃料ガス供給マニホールドに連通させ；それによって反応ガスとスチームを該燃料電池スタック中の各該リホーマー単位に、また生成ガスを各該リホーマー単位から完全に内部マニホールドするようになっており；請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 該セパレーター板と該セパレーター／リホーマー板が厚さ約0.010～0.050インチのブ

レス成型された金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 該セバレーター板と該セバレーター／リホーマー板の1つの面上の平らにされた該周辺ウエットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在周辺ウエットシールを形成するように該板のプレス成型体（shaping）を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在周辺ウエットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体（shape）を含んで成る、請求項4に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 該板の1つの面上の該延在マニホールドウエットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在マニホールドウエットシールを形成するように該板のプレス成型体を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在マニホールドウエットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体を含んで成る、請求項5に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 該リホーマー室に約5〜約10個の隣接する燃料電池単位の群が所定間隔で配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 前記セバレーター及びセバレーター／リホーマーのプレートが、約0.010〜約0.050インチの厚さのプレスされた金属プレートである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウエットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 前記ウエットシールの幅が約1/4〜3/4インチである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 前記アノードに面した側の前記セバレータープレートがニッケル及び銅より成る群から選択される1種類の金属で塗装又は被覆されている請求項1に

記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 前記電解質が1種類の固体イオン導体／固体オキシドの化合物を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 前記電解質がアルカリ金属カーボネートを含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 前記電解質がカーボネートタイプ及びマトリックスタイプの形態で前記燃料電池スタックに組み入れられている請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウエットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含み、前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セバレータープレートの1つの面上において前記セバレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セバレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セバレータープレートの他の面上において前記セバレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 集電装置が、前記アノード及び前記カソードのうち少なくとも1つと前記セバレータープレートとの間にある請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 複数の燃料電池ユニットからなり、各燃料電池ユニットがアノード及びカソード、そのアノードの電解質対向面と一方の側面で接しそしてそのカソードの電解質対向面と他方の側面で接している電解質、及びアノードとカソードとの間でそれらの燃料電池ユニット同志を分離してそのセバレーター板のアノード対向面とそのアノードとの間にアノード室を形成すると共にそのセバレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットのカソードのセバレーター対向面との間にカソード室を形成するセバレーター板からなり、そのアノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通しそしてそのカソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している；燃料電池スタックにおいて；それらの電解質、アノード、カソード及びセバレーター板は、燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており、セバレーター板は、それらの周囲全体にわたって各面において約1インチより少ない幅の電解質と接するように延在する平らな周辺ウエットシール構造を有して、電池の運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解

質ウエットシールを形成し、電解質、アノード、カソード及びセパレーター板はそれぞれ複数の整列したバーホレーションを有し、セパレーター板のそれらのバーホレーションは、セパレーター板の各面において電極及び集電体の少なくとも一方の約1インチより少ない幅と接するように延在する平らなマニホールドウエットシール構造により取り囲まれて、電池運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成して、電池スタックを貫いて延在する複数のマニホールド、その延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の一方の面上の一组のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及びその延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の他方の面上の別の組のマニホールドとカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成させ、それにより燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池へのならびにそれからの燃料及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与えることからなる改良。

【請求項19】 請求項18記載の燃料電池スタックにおいて、電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている燃料電池スタック。

【請求項20】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、燃料電池スタックは、その軸に沿って、それぞれが二つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーミング室を散在させており、それらのセパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の一つに対面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そしてセパレーター／リホーマー板の他方がカソード室の一つに対面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し、上記二つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封結合してリホーマー室を封入しており、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は第3番目の組のマニホールドからリホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与え、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は燃料ガス供給マニホールドへの強化水素生成ガスの連通を与え、それにより燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応剤ガス及び空気ならびに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホールドシステムを与える燃料電池スタック。

【請求項21】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板及びセパレーター／リホーマー板は約0.010～約0.050インチ厚のプレス加工金属板である燃料電池スタック。

【請求項22】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造は、その板のその一方の面上に前記延在

周囲ウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そしてその板の他方の面においては該板のその他方の面に固着された延在周囲ウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項23】 請求項22記載の燃料電池スタックにおいて、該板の一方の面上に延在するマニホールドウエットシール構造は、該板の該一方の面上に前記延在マニホールドウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そして該板の他方の面においては該板の他方の面に固着された延在マニホールドウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項24】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、該リホーマー室は、約5～約10の隣接燃料電池ユニットからなる群の間に散在されている燃料電池スタック。

【請求項25】 セパレータープレートが約0.010～約0.050インチの厚さの加圧金属プレートである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項26】 セパレータープレートの1つの面上の延長したマニホールドウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、および該セパレータープレートの他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する約0.010～約0.050インチの厚さの加圧シート金属成型物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項27】 ウエットシールの巾が約1/4～約3/4インチである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項28】 上記アノードに面した側のセパレータープレートがニッケウおよび銅からなる群より選択された金属で被覆または被着された請求項18の燃料電池スタック。

【請求項29】 電極が固体イオン導体／固体酸化物化合物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項30】 電解質がアルカリ金属カルボン酸塩からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項31】 電解質がカーボネートテープおよびマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている請求項30の燃料電池スタック。

【請求項32】 セパレータープレートの1つの面上の偏平な周囲のウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該セパレータープレートの上記1つの面上に該延長した周囲のマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、該セパレータープレートの他の面上では、該プレートは該セパレーターの上記他の面に固定さ

れた上記延長した周辺のマニホールドウェットシールを形成する加圧シート金属成型物からなり、該セパレータープレートの上記1つの面上の該延長したマニホールドウェットシール構造は、該セパレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウェットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、および該セパレータープレートの他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウェットシールを形成する加圧シート金属成型物からなる請求項30の燃料電池スタック。

【請求項33】 上記集電装置が燃料電池スタックの周辺縁部にまで延びている請求項18の燃料電池スタック。

【請求項34】 アノード、セパレータープレート、およびカソードからなる燃料電池ユニット用サブアセンブリーであって、

該燃料電池ユニットは上記アノード、カソードおよび燃料電池スタックの縁部に延びるセパレータープレートを有し、該セパレータープレートは、約1インチ未満の巾の、完全にそれらの周辺部全体の各面から延びる偏平な周辺のウェットシール構造を有し、上記あの一ど、上記カソード、および上記セパレータープレートは各々多数の整列した穿孔を有し、該セパレータープレートの穿孔は約1インチ未満の巾の、完全に該穿孔の周囲のセパレータープレートの各面から延びる偏平な周辺のウェットシール構造によって囲まれており、燃料ガスを上記延長したマニホールドウェットシール構造を通して上記マニホールドと上記セパレータープレートの1つの面上のアノードチャンバーとの間に流通させる導管および酸素ガスを上記延長したマニホールドウェットシール構造を通してもう1組の上記マニホールドと上記セパレータープレートの他の面上のカソードチャンバーとの間に流通させる導管を有することによって、各シール部分で封止接合された上記燃料電池スタック、上記アノード、上記セパレータープレートおよび上記カソードにおける各ユニット燃料電池に、燃料ガスと酸素ガスを流入させかつ流出させることができるようにしたサブアセンブリー。

【請求項35】 封止接合が溶接である請求項34のサブアセンブリー。

【請求項36】 セパレータープレートとウェットシール構造がウェットシール構造の偏平部分において厚さ約0.010-約0.050インチであり、巾約1/4〜約3/4インチである請求項34のサブアセンブリー。

【請求項37】 集電装置が上記アノードか上記カソードの少なくとも一方と上記セパレータープレートとの間にある請求項34のサブアセンブリー。

【請求項38】 集電装置が燃料電池スタックの縁部に延びている請求項37のサブアセンブリー。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は内部マニホールドを有する燃料電池スタックおよび内部マニホールドを有し且つ内部リフォームされた燃料電池スタックに関し、そして特にそのためのアノード/電流コレクター/セパレータープレート/電流コレクター/カソードからなるサブアセンブリーに関し、該サブアセンブリーは、電解質と組み合わせた時該電解質と電極との間にウェットシールを有するものである。このサブアセンブリーは、アセンブリーに対する安全と長期安定性を提供し、そしてセパレータープレートの設計は複数の内部リホーミングチャンバーを有することを可能とし、該チャンバーはアノードチャンバーと分離されてスタックの高さ方向に沿って配置されている。本発明は特に熔融炭酸塩および固形コンダクター/固形酸化物燃料電池に適用できる。

【0002】

【従来の技術】一般に、燃料電池電気発生ユニットは、不活性なもしくは二極性の電気伝導性鉄系金属セパレータープレートによって分離された各電池の複数のスタックからなっている。各電池は互いにサンドイッチ状に挟みあって固定された一つのスタックユニットをなして、所望の燃料電池エネルギー発生装置を形成する。各電池は一般にアノード及びカソード電極、共通の電解質タイル、および燃料と酸化ガスの供給源を含んでいる。燃料ガスおよび酸化ガスは双方とも、マニホールドを通して、セパレータープレートと電解質タイルとの間の夫々の反応成分チャンバーに導入される。電解質と他の電池成分との接触領域は、燃料ガスと酸化ガスの分離を維持しそしてガス漏れを防止および／または最小限にするため、ウェットシールとして知られている。初期の燃料電池の欠陥に関与する主な要因は、ウェットシール領域の腐食と疲弊である。この欠陥は、高温の腐食性電解質の接触および電池の熱サイクルの間の温度の大幅な変動に起因する高度な熱ストレスにより加速され、結晶内および結晶間クラッキングによる構造の脆弱化を招来する。このような欠陥は望ましくぬ燃料ガスおよび／または酸化ガスの混合および系外へのガス漏れを引き起こし、意図する酸化還元反応を阻害して、電池の電流発生の下および最終的停止を生じる。約500ないし700℃の範囲の燃料電池運転条件においては、熔融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料電池のハウジングとしておよびセパレータープレートとして必要な鉄系金属に対して非常に腐食性である。熔融炭酸塩燃料電池スタックの高温運転は、ウェットシール領域における腐食と熱ストレスの問題を増大し、このことは隣りあう材料の熱膨張係数が異なる場合に特に顕著である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、組み立てたスタックの各電池へ出入りする燃料ガスおよび酸化ガスのための、電池成分の設計により組み立ての容易さ、長期耐久性および燃料電池運転の安定性を提供する様式

で、完全に内部化したマニホールドを提供する。本発明はまた、リホーミング触媒の疲弊なしに行なえる炭化水素含有燃料の内部電池リホーミングのための、独立したリホーミングチャンバーのための内部マニホールドを提供することもできる。リホーム用メタンが酸化炭素と水素に変化する吸熱反応が、電池スタック内で有利に行われる。

【従来の技術】

【0004】商業的に実行できるカーボネート燃料電池のスタックは、各々8フィート四方の平面積を有する約600以上の電池を含んでよい。このような個々の電池のスタックにおいて、分離用板は、各々が1セットの分離用板の間に入れられた燃料及びオキシダントから個々の電池を分離し、燃料は分離用板の1面と電解質マトリックスのアノード側との間に入れられ、オキシダントは分離用板の他方の面と二次電解質マトリックスのカソード側との間に入れられる。

【0005】燃料電池の開発において強調されてきたことは、燃料電池スタックから物理的に分離可能なチャンネルマニフォールドを使用することにより、燃料とオキシダントガスを外部マニフォールディングすることである。しかしながら、各電池の入力及び出力はそれぞれの入力マニフォールド及び出力マニフォールドに開かれていなければならない。入力マニフォールド及び出力マニフォールドは電池スタックの外面上にクランプされていなければならない。電気的なショートを避けるために、金属マニフォールドと電池スタックとの間を絶縁しなければならない。外部マニフォールディングには、電池スタックの電位傾度に沿ってガスケット内でカーボネートの吸入排出を防止している間、マニフォールド／マニフォールドガスケット／電池スタックの界面において十分なガスシールを維持するために重大な問題が存在する。電池スタックから金属マニフォールドを絶縁するためのさまざまな組み合わせが使用されてきたが、高温熔融カーボネートの燃料電池操作条件下においてはカーボネートが浸透できないにもかかわらず、ガス密封のスライディングシールを提供すること及び電氣的に絶縁することは困難であり、満足の行く解決は見いだせなかった。マニフォールディング及びシールディングの問題は、多数の電池及び広い平面積を電池スタックに使用する場合、より厳密になる。大多数の電池を使用する場合は、スタックの高さに沿ったシール領域内でカーボネートを動かす電位が増加し、そして電池の平面積が増加する場合は、各成分の線状許容量及び各成分の側面配列は、マニフォールド／マニフォールドガスケット／電池スタック間の表面のシールを維持するのが極端に困難になる。

【0006】600の電池を含むセルスタックス (cell stacks) は約10フィート (3.048メートル) もの高さになり得るので、外部マニホールド (external manifolds) の剛性 (s

tiffness) が要求されること及びマニホールドをセルスタック (cell stack) 上に押圧するのに必要な締付力の使用といった重大な問題が生じる。セルアセンブリー (cell assembly) とセル操作条件との間の熱勾配、示差熱膨張 (differential thermal expansions)、及びマニホールドに使用される材料の必要な強度のために、精密許容差及び非常に困難な工学的問題点が生じる。

【0007】従来は、個々の熔融カーボネート燃料電池は、分離板 (separator plate) の外面周囲にスペーサーストリップ (spacer strips) を設けてウェットシールを形成するとともに取入れ及び排出マニホールドを形成していた。高温燃料電池のウェットシール部分の環境における様々なシール手段は、以下の米国特許に開示されている。米国特許第4, 579, 788号はウェットシールストリップを粉末冶金技術を利用して製作することを教示している。米国特許第3, 723, 186号は、電解質自体がその周囲の領域にある不活性材料から成り当該電解質とフレーム若しくはハウジングとの間で不活性周辺シールを作っていることを教示している。米国特許第4, 160, 067号は、ウェットシール部分における燃料電池のハウジング若しくはセパレーター上への不活性材料の蒸着 (deposition)、又はこのいずれかに含浸された不活性材料の蒸着を教示している。米国特許第3, 867, 206号は、電解質飽和マトリックスと電極の電解質飽和周辺縁端との間におけるウェットシールを教示している。米国特許第4, 761, 348号は、ガス不透過性材料の周辺レールによってガスシール機能を付与しオキシダント及び燃料ガスからアノードとカソードをそれぞれ隔離することを教示している。米国特許第4, 329, 403号は、電極から内部電解質領域への移動に際し、熱膨張係数がより漸進的に変化する電解質組成物を教示している。米国特許第3, 514, 333号は、薄いアルミニウムのシール用ガスケットを用いた高温燃料電池におけるアルカリ金属カーボネートのハウジングを教示している。上記の特許をいずれも、燃料電池スタックにおける内部燃料とオキシダントの周囲のシールを扱ってはいない。

【0008】リン酸燃料電池 (約150℃ないし220℃で作動する) のガスシールを、電池の構成要素の多孔質材料周囲の細孔の炭化ケイ素及び／又は窒化ケイ素でふさぐことによって行うことが米国特許第4, 781, 727号に、また支持板縁端 (substrate plate edge) に透き間のある空間 (interstitial spaces) を設けることによって行うことが米国特許第4, 786, 568号および第4, 824, 739号に、それぞれ教示されている。燃料のみの内部マニホールディング (internal

manifolding)について低温電解槽(low temperature electrolytic cells)において直面するシール及び腐食の問題の解決、例えば、米国特許第4,259,389号に教示されている顆粒状不活性材料のポリテトラフルオロエチレンをもちいた接着、米国特許第3,012,086号に教示されているポリエチレンのガスケット、及び米国特許第3,589,941号に教示されている“O”リングシール等は、高温熔融カーボネート燃料電池に適しているとはいえない。

【0009】米国特許第4,510,213号は、電池ユニットの活性部分(active portion)と取り囲んでいるトランジションフレーム(transition frame)によって個々の電池のガスコンパートメント(gas compartment)に燃料とオキシダントマニホールドを与え、当該マニホールドはセパレーターも当該電池の電解質タイル(electrolyte tile)も貫通しないことを教示している。このトランジションフレームは隣接する電池間で複雑な絶縁を必要とし、いくつかの独立した複雑な部分から成っている。米国特許第4,708,916号は、熔融カーボネート燃料電池に関する燃料の内部マニホールディング及びオキシダントの外部マニホールディングを教示している。上記熔融カーボネート燃料電池においては、何組かの燃料マニホールドが個々の電池の中央部分及び両末端にある電解質とセパレーターのみではなく電極をも貫通して、短縮された燃料用流路を形成している。末端の燃料マニホールドはセパレータープレート(plate)の厚い縁端壁面部(edge wall area)にあり、一方、中央部の燃料マニホールドは厚い中央部領域を貫通しており、カーボネートで含浸されたシール用テープ又は独立した円筒状コンジットインサート(conduit insert)はカソードを貫通して延長されている。

【0010】内部のマニホールド化は、電池の対向縁に沿った複数のマニホールド孔を用いたことにより燃料ガスとオキシダントガスとに並流又は向流を与えるように意図されていた。燃料用のこれらマニホールド孔は反対縁に沿った拡大された周辺ウェットシール領域中に配置されていたが、マニホールドは電解液の外部構造が複雑であり、少なくとも1つの電極を通過する。しかしながら、隣接するマニホールド孔は燃料用及びオキシダント用に使用され、これは短いウェットシートを横切る短い通路、ガスの漏出を与え、更に必然的に拡大された周辺ウェットシール領域により電池の活性領域の好ましくない減少を与える。例えば、米国特許4,769,298を参照されたい。

【0011】同様に、内部マニホールド化の従来の試みでは、電池の4つの全ての縁のそれぞれに、拡大された周辺ウェットシール領域に沿って複数のマニホールド孔

を用いた。しかしながら、前述の様に隣接する燃料及びオキシダント用マニホールド間の短い通路、同様な複雑な構造及び孔により、ガスの漏出を生じ、更に電池の活性領域を減じた。

【0012】燃料としてガス化生成物を用いた場合、炭化水素成分を改質し、燃料電池スタック内の内部改質による燃料内の水素含量を増加することが好ましい。しかしながら、従来の改質触媒は、その活性サイトが炭酸塩の膜によって被覆されるため、熔融炭酸塩電解質により失活することが知られている。("Development of Internal Reforming Catalysts for the Direct Fuel Cell", Michael Tarjanyi, Lawrence Paetsch, Randolph Bernard, Hossin Ghezal-Ayagh, 1985, Fuel Cell Seminar, Tucson, Ariz, May 19-22, 1985, pp. 177-181, 参照)。

【0013】更に、熔融炭酸塩燃料電池の長期の耐久性を損なう別の問題点は、熔融炭酸塩電解質による多孔性アノード構造の変形、流体集積体、分離板のようなアノード側のハードウェアの腐食、及びそれによる電解質の損失、及びアノードとカソードの溶解による多孔性アノードを通るガスのクロスオーバー、電解質の損失を生じることである。燃料電池に長期間の安定性及び耐久性を与えるために、これらの1または2以上の問題点を解決するための多くの試みがなされてきた。

【0014】燃料電池のアノード室への燃料供給流の水素含量を増加させることは、幾つかの特許に示されている。米国特許3,266,938には複数の高温燃料電池を連続的に配置し、それによって、連続配置中の第1の電池のアノード室からの排ガスを電池の外部で吸熱反応により接触改質して追加の水素を生産し、次いで配列中の第2のアノード室に通す。第2の燃料電池のアノード室の排ガスは電池の外部で接触発熱転換反応に付し、水素を生産し、配置中の第3の燃料電池のアノード室に供される。改質及び転換反応は燃料電池の外部で行われ、燃料電池のアノード室への供給燃料により高含量の水素を与える。米国特許4,522,894では、接触酸化及び水蒸気改質により、液状炭化水素供給物の水素含量を増加することが教示されている。ここで、酸化によって生じる熱エネルギーは燃料電池外での改質に使用されており、燃料電池のアノード室への燃料供給流中に高い水素含量を与える。

【0015】米国特許3,488,226では、液状炭素水素の低温、低圧水蒸気改質により、熔融炭酸塩燃料電池のアノード室用の供給燃料中に水素を増加させることが教示されている。ここで、改質は燃料電池の外部で行われ、燃料電池で生じる熱の熱処理機能として作用する。1つの具体例としては、改質触媒は燃料電池のアノード室内に置くこともできる。また、たの具体例では、燃料電池からの廃熱は水素発生のための吸熱改質反応を維持するのに直接に使用する。米国特許4,702,973では、熔融炭酸塩燃料電池用の2室アノード構造が

示されている。ここで、熔融炭酸塩電解質は、水素イオン透過性で電解質不透過性の金属箔によって、汚染された燃料ガス及び改質触媒から隔離される。

【0016】

【発明の要約】本発明は、完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供し、特に、高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適する。本発明の完全に内部的にマニホールドされた燃料電池は、平面構成要素を有する任意の電池、特に例えば熔融カーボネートおよび固体導体／固体酸化物燃料電池のような高温燃料電池に適する。一般的には複数の燃料電池単位の長方形燃料電池スタックが作られ、各燃料電池単位はアノードおよびカソード、アノードの片側上に接しおよびカソードの反対側上に接する電解質、ならびにひとつの電池のアノードと隣接する電池のカソードとの間の電池単位を分離して分離板の片側とアノードの間にアノード容器を形成し、および分離板の反対側とカソードとの間のカソード容器を分離する分離板から成る。この燃料電池単位はスタックされ、分離板と同様な内部構造を有する末端板が提供され各端部に半分の電池を形成し、燃料電池スタックに強固な構造を与えるためにクランプ止めされる。本発明の燃料電池スタックでは、電解質、電極、集電装置および分離板は約同様の外寸を有することができ、燃料電池スタックの端の領域に伸びることができる。分離板は、平坦な末端シール構造を有し、これは分離板の平面から伸びて各分離板のフェイス上の集電装置および／または電極に、それらの末端の回りに完全に接触して末端シールを形成する。アノード、アノード集電装置、分離板、カソード集電装置およびカソードのサブアセンブリーは、制御された条件で組み立てられることができ、つぎにこのようなサブアセンブリーは電池スタックを作るときに電解質および電解質マトリックス部分と組合わされる。

【0017】本発明はまた、燃料電池スタック内に炭化水素性（hydrocarbonaceous）燃料を再構成するための分離された容器を有する完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供でき、付加的な水素燃料を提供し吸熱再構成化反応のための熱エネルギーを引き出し、これによって燃料電池の発熱電気化学反応による加熱により必要とされる燃料電池スタックの所望する冷却を提供することができる。本発明は特に高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適し、電解質からの再構成化触媒の分離を提供し、これは熔融アルカリカーボネートの場合には容易に触媒の力を無くす。

【0018】電解質、電極、集電装置およびセパレーター・プレートが、一直線に並ぶ多数のパーホレーション（穿孔）を所望の位置に有している。各セパレーター・プレートの穿孔は偏平なマニホールド・シール構造によって囲まれており、そしてそれは、セパレーター・プレートの面から該セパレーター・プレートの各面上の集電装置

および／または電極に接触するまで延びていて、セパレーター・プレート／集電装置および／または電極シールを形成し、それが各穿孔を囲んで各穿孔を通してガス・マニホールドを形成し、そして電極スタックを通して延びている。延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール（穴）は、燃料マニホールドとセパレーター・プレートの一面にあるアノード室との間にガス整流を供給し、そして、延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール（穴）は、オキシダント・マニホールドとセパレーター・プレートの反対面上にあるカソード室との間のガス伝達を可能にする。この構造により、燃料電池スタックにおける単位燃料電池の各々へ、および各々から、燃料およびオキシダント・ガスの内部マニホールディングが十分与えられる。同様に、炭化水素反応ガスおよび蒸気が燃料電池スタックを通じて散在するリホーミング室へ供給されるだろうし、そして、水素濃縮改質生成ガスが各リホーミング室から燃料マニホールドへ送られ、下流のアノード室へ供給される。

【0019】スタック末端プレートは、それらの内面上のセパレーター・プレートへ同様にして配設され、該燃料電池スタックの組の各々に供給し排出する手段が備えられている。末端のプレートの接続部分（コネクション）におけるマニホールドの適当な組へ、および組から、燃料ガス、オキシダント・ガスおよび炭化水素反応ガスを供給し排出する外部手段は、いかなる従来技術手段によって備えてもよい。ここで「マニホールドの組」というのは、1またはそれ以上の燃料入口を形成する第1の組、1またはそれ以上の使用済の燃料排出口である第2の組、1またはそれ以上のオキシダント入口である第3の組、1またはそれ以上の使用済のオキシダント排出口である第4の組、そして1またはそれ以上の反応ガス入口の第5の組をいう。セパレーター・プレート、集電装置、電極および電解質を通じて形成されている穿孔は、丸、正方形、長方形、三角形、または他のどんな所望の形や大きさであってもよい。そのような穿孔の各々は単一の穿孔として述べられているが、所望のガス分配を供給するには困難を生じるだろう。電池の活性領域の向こう側に所望のガス流量とパターンを供給するために、所望に応じて、電池構成要素を通して、任意の数のマニホールドを備えてよい。本発明では、少なくとも約0.25インチ離れた隣合うマニホールドのエッジ（縁）を有する各マニホールドで囲まれたセパレーター・プレートと集電装置および／または電極との間に直接シールを備えることが重要である。本発明はまた、セパレーター・プレートと集電装置および／または内部マニホールドの領域の外部にある電極との間に直接、連続する周辺シールを備える。

【0020】一つの好ましい実施例においては、本発明に係る分離板はプレスした薄い金属板であって、燃料電

池の全作用領域に波状の部分および／又はくぼみが設けられていて、一つの面上に全周縁部と、分離板の反対側の面に溶接された薄い金属の直立したシール構造を有するマニホールドシール構造とが、プレスによって形成されており、それによって、分離板と、分離板の対抗する両面上のコレクタまたは電極との間に、全周縁部とマニホールドシールが設けられている。例えば棒状または帯板状の、粉末冶金法および類似の方法によって形成される延長したシール領域を設けるために、どのような構造を用いてもよい。一方の側にアノード電流コレクタおよび／又はアノードがあり、反対側にカソード電流コレクタおよび／又はカソードがある分離板の半組み立て品は、マニホールドと周縁のシール構造の領域内で金属製の要素を溶接またはろう接することによって製造することができる。

【0021】好ましい実施例においては、マニホールドとアノード室とカソード室さらにはリフォーム室の間のガスの流通を与えるための、延長したマニホールドシール構造を通る導通路または穴は、適当な波状にした金属によって形成される開口であるか、あるいは薄板金属または棒状構造を通る穴であってよい。

【0022】本発明は一つのガス導通路を隣接するガス導通路から確実にシールするものであり、それによって高温および腐食性の燃料電池、例えば溶接炭酸塩燃料電池スタックからの、完全に内部でマニホールドしたガスの供給と除去を行うための有効な手段を与える。また本発明の構造を用いることによって、マルチ電池スタックに炭酸塩を供給するための有効で様々な手段も得られる。

【0023】本発明の構造はまた、燃料電池スタックの中に散在する完全内部マニホールドリフォーム室をも与えるものであり、それによってアノード室に高品質化した水素燃料を供給する炭酸水素燃料ガスがリフォームされ、また一方では、リフォーム反応を進め、燃料電池スタックを冷却するための電気化学的に生成された熱エネルギーを有効に利用するものである。

【0024】本発明は燃料電池要素、特に分離板の半組み立て品、アノード電流コレクタおよび／又はアノード、およびカソード電流コレクタおよび／又はカソードの、大量生産可能な形状を与え、また制御された条件下で実際の費用で製作できる。本発明の半組み立て品の使用によって、燃料電池スタックの組み立てが容易になり、また様々なサイズの燃料電池スタックのモジュール化が可能となる。

【0025】本発明はまた、内部リフォームを伴う完全内部マニホールド燃料電池スタックを使用する、特に溶融アルカリ金属炭酸塩燃料電池スタックを使用する電気生成方法を与えるものである。

【0026】本発明の好ましい実施態様においては、燃料とオキシダントは完全内部マニホールド燃料セルスタ

ック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/505,293号に記載されるように流す。同様に、燃料、オキシダント、反応ガスおよび蒸気を完全内部マニホールドと内部改造燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/517,227号に記載されるように流す。これらの米国特許出願全体は本明細書の一部として引用する。また、これらの先行出願には、所望の完全内部燃料、オキシダント、反応物と蒸気および排出マニホールドと連動させて、一般に防流体性のアノード、カソードおよび改造チャンバーを提供する電解液と接触するように伸長する周辺ウェットシール構造と直立マニホールドウェットシール構造によって形成される電解液とセパレータープレートとの間のウェットシールしたセパレータープレート中のくぼみに取り付けられた集電部と電極からなる発明の実施態様がより詳細に記載されている。この出願により詳細に記載されている態様は、セパレータープレートの周辺部に伸長する集電部と電極からなっており、これによって製造許容範囲が広がり、セパレータープレート、集電部と電極のサブアセンブリーをより実的なものにしている。この出願により詳細に記載されている態様においては、ウェットシールは、周辺シール部と各内部マニホールドを囲むシール部分の、電解液と集電部および／または電極間にある。

【0027】本発明は、完全内部マニホールド燃料セルスタックに関するものである。好ましい実施態様においては、電解液タイル、電極、集電部およびセパレータープレートはそれぞれ配列したマニホールドダクトによって透過されている。これらの要素は皆ほぼ同じ大きさの、セル周辺かその近辺にまで伸長する集電部と電極である。これらの態様によって、セパレータープレートのくぼみ内に電極と集電部を密にフィットさせることが要求される強い許容性の問題を解決している。これらの態様はまた、アノード／集電部／セパレータープレート／集電部／カソード集積ユニットのサブアセンブリーをより簡単かつ実用的にしている。これらの要素のブレイクアセンブリーは、あらかじめ構成したサブアセンブリーと電解液へのスタック要素の数をかなり少なくすることによって燃料セルスタックのアセンブリーをかなり機能的にしている。本発明では、セパレータープレートの一面から伸長する圧縮シール部とセパレータープレートの反対面から伸長する薄いシートフォームを有する薄いシートセパレータープレートを用いて、マニホールドと周辺シール部を形成するのが好ましい。この薄いシートシール部はフレキシビリティとレジリエンスを制限して密閉するものである。

【0028】本発明の燃料セルスタックは、本明細書の一部として引用される上記の先行出願により詳細に記載されるように、燃料とオキシダントガスをセルスタックの十分に内部に流す。先行出願に記載されるように、セルセパレータープレートとともにセルのエッジに伸長す

る電極の角の部分にマニホールドホールを設けてもよい。電極の周辺部の回りにあるそれぞれの面上にある通常のウェットシールを形成する各面上のセパレータプレートと電解液間の接触によって、液体を封じ込めている。マニホールドホールとアノードとカソード区画の間の液体流通を可能にする所望のオープニングを通して、電解液とセパレータプレートの間の通常のウェットシールでマニホールドホールをシーリングしながら所望のガス流通を行ってもよい。この出願により詳細に記載される態様は、セパレータプレートの周辺部に伸長する集電部と電極を有し、集電部と電極のマニホールドホールをマッチングさせることを要し、従来法として記載される態様におけるように電解液とセパレータプレートとの間ではなくて電解液と電極との間のウェットシールを行う。

【0029】分離プレート、電解液タイル、電極及び電流コレクターにおける調和マニホールド孔は、ガスの供給及び排出用の燃料電池スタックの全高さにわたって連続しているマニホールド導管を形成する。本発明は、燃料電池スタック中の全電池へ内部的に伸びているマニホールド導管が単一の外部開口から供給されるものであり、一方従来の外部的にマニホールドされた燃料電池スタックは、各独立した燃料電池へ向かって又はそれからの外部開口を必要としていた。ガスは、1つの半電池として作動するエンドプレートを通して燃料電池スタックへ供給され、そして他の半電池として作動する同様のエンドプレートを通して排出される。

【0030】流体が燃料電池スタックへ供給され、又それから取り出される方法は、広範囲のバリエーションにおいて行われる。ガスシーリングは、各個の電池内及び燃料電池スタックに散在するリフォーミング室内の望ましい位置にガスを導入するのに適するように、分離プレート周辺と各ガスマニホールド領域との両方において、電解液タイルと電極との間のシーリングにより通常の方法で、達成される。ウェットシールは、分離プレートの両側上にある類似の直立シール構造物によって、これらの領域に形成される。

【0031】各先願の図1に示されるように、電解液20及び分離プレート40は電池の外側端まで延びて、ウェットシール領域23における周囲のあたりでお互いにシールされている。独立した熔融炭酸塩燃料電池ユニットはアノード26とともに示されており、そのアノードは分離プレート40の一面から離れており、矢印38によって示されているように燃料マニホールド孔24により供給されるアノード室を形成する。分離プレート40の他面には、カソード27が分離プレート40から離れて設けられ、矢印39により示されるようにオキシダントマニホールド孔25と連結してカソード室を形成する。電解液20及び分離プレート40は、周辺ウェットシール領域23を形成する電池の外端まで延び、その領

域が電解液と流体封じ込め用の分離プレートとの間の周辺ウェットシールを形成する。燃料マニホールドウェットシール領域45及びオキシダントウェットシール領域46は、電解液/分離プレートウェットシールによりマニホールドシーリングを形成し、分離プレート40の反対側にあるアノード及びカソード室への流体の望ましい導入を行う。如何なる追加のガスケットもシーリングのために使用されず、又この電池ユニットは炭酸塩テープも包含する広範囲な種類の炭酸塩添加技術に適応することができる。

【0032】本願の図1（正確な縮尺率で書かれていない）は、本発明の一つの態様に従った周辺シール部分の詳細を示すものであり、薄いシートセパレータ板40は、穿孔30を有するカソード27の集電装置28に隣接して波形の一面上にピークをもつ波形にされており、該電池のカソード面上にカソード集電装置28に隣接して置かれている。平らな薄いシートのセパレータ板周辺シール部分44をもつように形成されている。薄い金属ストリップ材から形成されたセパレータ板シールストリップ41は、溶接点42で溶接されているか、もしくはセパレータ板40のアノードに付設させて、該電池のアノード側に穿孔31を有するアノード26の集電装置26に隣接して設置されている平らなセパレータ板シールストリップ周辺シール部分43を与える。

【0033】セパレータ板及びシールストリップの位置は、逆にされても良く、セパレータシールストリップシール部分43とセパレータシール部分44の間隔は、個々の電池の必要とする間隔に合うように形成されることは、極めて明らかである。該電池の構成部材の各々は、ほぼ該電池の周辺に伸びているが、セパレータ板の立上り部分により形成されるウェットシール部分において電解液と電極及び/又は集電装置との間のウェットシールを形成するシール部分43と44の十分な重複がある限り、ここでは寸法は臨界的ではない。類似のウェットシールは、セパレータ板の各々の側で類似の立上りシール構造により、各々のマニホールドの周囲に形成される。電池操作条件下で電極を通る電解液の漏れを防止するために、ウェットシールの部分において、多孔性電極は、ろう付材の如き、高融点材料で充填される。電池スタックが共にしっかりと締められる時、セパレータ板の周辺の周囲と内部マニホールドの各々の周囲のセパレータ板の両面に、立上りウェットシール部分からの圧により、ウェットシールが形成される。

【0034】我々は、広いウェットシール部分機能よりも、狭いウェットシール部分機能が良いことを見出した。立上りウェットシール部分は、セパレータ板と同じ薄い材料、約0.010-0.050インチ、好ましくは約0.015-0.025インチで構成されることが望ましい。又、漏れの原因となるたるみや曲がりやすさを避けるために、約1インチより小さい幅に限定する

ことを見出した。立上りウエットシール構造物の幅は、好ましくは約0.25-0.75インチで、内部ブリッジングや支持の必要性をなくせる。さらに、我々は、幅1インチ以下のウエットシールは、電解質マトリックスにおける良好な炭酸塩電解質保持をさせる電池昇温間に、グリーン電解質マトリックステープから有機質バインダーの、必要な十分な除去を与えることを見出した。約1インチを超えるウエットシール幅は、電池操作間に漏れがちなウエットシールに導く、残留する炭素質材料や少量の炭酸塩電解質が存在することになる。再び、追付のガスケットはシールのために用いられることはなく、又該電池ユニットは炭酸塩テープの使用を含め、追加の炭酸塩技術の広い変化に適應できる。

【0035】炭酸塩テープを用いるときには、炭酸塩テープ及び電解質マトリックスは、セルエッジに向けて伸びている。そして、インターセルスペーシングは、炭酸塩テープが溶融すると、該炭酸塩テープの厚さに比例して減少するが、シーリングとセルコンポーネント全体の組み立ては常時維持される。炭酸塩テープが溶融する前にセルをヒートアップする間、マニホールドホール24及び25のそれぞれのまわりは、シール状態が維持される。この理由は、炭酸塩テープ及び電解質マトリックス、例えば LiAlO_2 が、隣接するシール面に向かっており、しかも、ゴム状のバインダーを含有しているからである。バインダーが燃え尽きる間、ガスの流れは維持され、そしてシールが得られる。なお、バインダーが燃え尽きるのは、炭酸塩が溶融する前である。バインダーが燃え尽きて、セルの温度が上昇して炭酸塩の融点になったとき、溶融炭酸塩は多孔質 LiAlO_2 、テープ及び電極に吸収される。内部セルスペーシングは、炭酸塩テープが溶融してその間隔が減少するが、室温から作動温度である約650°Cまでシールは保持される。シール部分にある薄い金属シートが有する、制限された柔軟性と振りに性によって、セルのシールは更に確実となる。

【0036】図2は、本発明の一態様に従う溶融炭酸塩燃料電池スタックの燃料電池ユニットの斜視分解図である。図2において、40はセパレータプレート、27はカソード、28はカソード集電体、20は電解質、26はアノード、29はアノード集電体である。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20は、セルの周辺部分にまで伸びており、セパレータプレート40の両面においてウエットシールを形成する。つまり、電解質20とカソード27及び／又は集電体28との間、そして、電解質20と、アノード26及び集電体29との間において、ウエットの周縁部全体にわたってウエットシール43が形成される。周縁部のウエットシール構造43は、セパレータプレート40の面から上方及び下方に伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面は、集電体及び／又は電極の周縁部と接触することになる。セパレータプレ

ート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20には、それぞれ、対応する位置に燃料用マニホールドホール24とオキシダント用マニホールドホール25が設けられている。それぞれのマニホールドホールは、一方が供給用のホールであり、他方が排気用のホールである。図2に示すように、マニホールドホールは、好ましくは三角形をしている。これは薄いシートから容易にマニホールドシール領域を形成できるからである。しかしながら、マニホールドホールは、円形や矩形その他の形状でもよい。図2に示すマニホールドホールは一つの開口部となっているが、例えば、セルの反応チャンバー中を流れるガス流を制御するために開口部にパーティションを設けてもよい。燃料用マニホールドウエットシール領域45及びオキシダント用マニホールドウエットシール領域46は、セパレータプレート40の上方及び下方に向かって伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面において、集電体及び又は電極と接触することになり、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極との間でウエットシールを形成する。なお、周縁部のウエットシールの場合と同様に、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極はガス導管を形成する。

【0037】図2に一番よく表されている通り、オキシダントマニホールド孔25はオキシダント流れをカソード室（示されている通り分離板の上面に隣接している）にのみ及びオキシダント流れをカソード室から提供するオキシダントマニホールドウエットシール46によってシールされる。このカソード室はオキシダント供給開口48及びオキシダント排出開口48'の近くにあり、このシール46はガスがアノード室に又はアノード室から流れるのを回避している。一方、燃料マニホールド孔24は燃料マニホールドウエットシール45でシールされ、このシール45は燃料流れをアノード室（示されている通り分離板の下方面に隣接する）のみに流し、及びアノード室から流し、このアノード室は燃料供給開口47及び燃料排出開口47'の近くにあり、このシール45はガス流れがカソード室に又はカソード室から流れるのを回避している。マニホールドウエットシールはストレータプレスされたシート金属構造として示されるが、それらはガス流れを回避するためにあらゆる望ましい形又は構造をとることができる。このマニホールドウエットシールは燃料マニホールド孔24とオキシダントマニホールド孔25の間に二重のウエットシールを形成する。

【0038】分離板40は望ましい物理的強度及びガス分離を提供する適当な物質からなってもよい。この分離板は望ましくは非常に薄く、約0.010-0.050インチの厚さであり、好ましくは、約0.015-0.025インチの厚さである。多くの電池スタックでは、バイメタル分離板を使用することが好ましく、第一鉄金

腐食を避けるため、カソード面にステンレス鋼をアノード面にニッケル又は銅を使用できる。このニッケル又は銅は分離板の厚さの10%をクラッドし、積層し又はめっきである。分離板はタイプ300シリーズのステンレス鋼のような第一鉄合金から二次加工もまたできる。この分離板はガス室非反応性分離器を提供するのと内部負荷支持部材としての燃料電池への構造的強度を提供するのとの二つの機能を提供する。電極に隣接してガス的好循環及び強度の両方をするために活性面積内の波形及び／又はえくぼを有する横断面形有する分離板を使用することが好ましいが、本発明の原理は、周囲のシール域を提供し、内部マニホールド孔の周りにシールを提供すると同時に燃料電池操作で要求されるようにガスを内部マニホールドへ通し、及び内部マニホールドからガスを通す構造の水平な分離板にもまた適用できる。

【0039】薄くスタンプされたスタンプ鋼板は、American Heat Reclaiming Corp.(1270 Avenue New York 100 20, NY)による刊行物"Modern Designs For Effective Heat Transfer"及びTranter Inc.(Wichita Falls, Texas 76307)による"Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger"で示される熱交換技術に利用されている。これらの熱交換器は一連のエンボスされたガスカート又は板の一面上の熱媒体の通路用の溝を提供する末端フレーム及び板の他の面上の冷媒体の通路の間で一緒にボルト締めされたプレスされた金属板を使用する。しかしながら、燃料電池スタック分離板は非常に異なる問題、シーリング及び熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池操作条件下における腐食の問題、異なるマニホールド配置、シーリング及び流体連通手段の問題（二つの流体は分離した関係で隣接する分離体の間を通過しなければならないので）を提供している。熱交換では、ひとつのみの流体が隣接する熱交換板の間を通過する。しかしながら、本発明のこの燃料電池スタックの電極を流れる流体流れの技術はデザイン技術及び渦巻き模様、洗濯板、直線波形及び混合波形のような熱交換器の原型を有利に利用できる。

【0040】我々のセバレータプレートの両側における同方向の流れ及び対向方向の流れに関する先行出願においてより詳細に記述され且つ示されている本発明のセバレータプレートの実施態様に加えて、図4に本発明に有用な別のセバレータプレートが示されている。図4に示されているセバレータプレートには4つの同様な繰返し域が設けられており、商業的に実施可能な最大面積のセル、例えば10,000 cm² すなわち約34×57 in² 程度のセルとするときには望ましいガス流を提供できる。図4にはセバレータプレート240が示されている。このとき、燃料供給用のマニフォールド型孔224から燃料は矢印で示されているようにアノードチャンバーを通過し活性領域を横断して燃料の欠乏したマニフォールド型孔224Aに向かう。オキシダントはオキシダ

ント供給用マニフォールド型孔225を通過してセバレータプレート240の反対側に供給され、そして、カソードチャンバーを通過しオキシダントの欠乏したマニフォールド型孔225Aに向かう。電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール246はマニフォールド型孔を封止しており、その結果として流体の漏れが防止される。同様に、電解液と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール223はセルの全周を封止している。図4では、本発明に係わる大規模な燃料電池のスタック用に適している集電装置の1つの形状が示されている。なお、その他の多くの形状も同様に適していることは理解されたい。

【0041】図3には、図2に示されたユニットセルを備えた燃料電池のスタックの実施態様の1つが示されている。ここでは、燃料電池の軸方向に沿って内部に分散させるのに適当なリフォーミングチャンバーが備えられている。リフォーミングチャンバーは、アノードセバレータ／リフォーマプレート40"とカソードセバレータ／リフォーマプレート40"との間に設けられる。セバレータプレート40、カソード27、カソードコレクター28、電解液20、アノード26及びアノード集電装置29は図2に関して説明されたものと類似しているが、反応ガス用マニフォールド型孔50に関しては異なっている。反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51は、セバレータプレート40"の一般的な(general)平から両方の面上に伸びており接触して電解液20と隣接する電極との間でウェットシールを形成せしめ、反応ガス用のマニフォールド型孔の境界を定めている。オキシダント及び燃料用のマニフォールドに関してはこのことは既述されている。反応ガス用マニフォールド型孔50の直径はセルのそれぞれの部品のものと同じであり、反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51の平らな面が一方の側で電解液20とカソード27及び／又はカソード集電装置28との間で接触をし、且つ、電解液20とアノード26及び／又はアノードコレクター29との間で接触をし、反応ガスのマニフォールドを囲うウェットシールを形成する。セバレータプレート中における伸びている反応ガス用マニフォールド型ウェットシール領域の側面は固体であり、それ故、反応ガスのアノードチャンバー又はカソードチャンバーへの流入が阻止される。アノードセバレータ／リフォーマプレート40"は、セバレータプレート40"中にあるオキシダント供給開口48及びオキシダント欠乏開口48'とが含まれず、且つ、その結果として、アノードセバレータ／リフォーマプレート40"の上面に近接したリフォーマチャンバーはいずれのオキシダントマニフォールドとも連通していないという点においてのみセバレータプレート40と異なる。伸びている反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51の側面に

おける反応ガス開口53は、反応ガスのマニフォルド50とリフォーマーチャンバーとを連通させる。同様にして、カソードセパレーター／リフォーマープレート40'の下側は、伸びている古い燃料用マニフォルド型ウェットシール領域45の固体側面を備えるように改変して、古い燃料マニフォルド24とリフォーマーチャンバーとの間をブロック連通させる。このとき、古い燃料用マニフォルド24は備えられていない。反応ガス供給用開口53は、反応ガスマニフォルド50とアノードセパレーター／リフォーマープレート40"とカソードセパレーター／リフォーマープレート40'との間に形成されているリフォーマーチャンバーとの間を連通させる。標準的なセパレータープレート40'にこれらの改変を加えて、完全に内部がマニフォルド型になっている反応ガス部及び流れ供給部を備えたリフォーミング反応チャンバーは、燃料電池のスタック内に望ましい間隔を置いて点在させてもよい。既に詳述したのと同様にして、セパレーター／リフォーマープレートを前以て組み立てて、対応する電極及び集電装置を備えたセパレーター／リフォーマープレートのサブアセンブリを形成してもよい。

【0042】燃料電池スタックが組み込まれた時、周囲のウェットシール領域とアノードセパレーター／リフォーマー板40"のすべてのウェットシール領域はカソードセパレーター／リフォーマー板40'から伸びる対応するウェットシール領域と接触し、強固な金属／金属シールを形成し、このシールはウェットシール領域での限られた柔軟性と弾性のために、マニホルドを板40"と40'の間の空間により形成されるリフォーマー室から効果的にシールする。所望の場合には、リフォーマー室を形成する伸ばされたウェットシール領域をさらにセパレーター板40上まで伸ばし、セパレーター／リフォーマー板の間の空間をより大きくし、リフォーマー室の体積をより大きくすることができる。所望の場合にリフォーマー室の体積を大きくするもうひとつの方法は、横壁を溶接によりマニホルドウェットシール領域と周囲のウェットシール領域のそれぞれまで伸ばすことであり、そのようなセパレーター／リフォーマー板までの延長によりリフォーマー室の深さを所望の深さにでき、一方、リフォーマー室の締切りとリフォーマー室を通る所望のマニホルドのシールされた通路を与える。リフォーマー室が上記のように補足的に深くされた場合、金属製導電性ビラーをセパレーター／リフォーマー板の間の所望の位置に設けることができ、リフォーマー室構造に弾性を付与し、導電性を付与することができる。同様な方法で、対応する電流コレクターと電極を含む全体のリフォーマー室構造が、燃料電池スタックの組み立ての前にはあらかじめ組み込まれることができる。

【0043】軸方向に複数のリフォーミング室が散在する燃料電池スタックの基本的な構成は、それぞれのリフォーミング室が2つの離れたセパレーター／リフォーマー

板により形成され、1つはアノード室に面したセパレーター板の面の外側に位置し、2つめはカソード室に面したセパレーター板の他方の面の外側に位置し、2つのセパレーター／リフォーマー板はそれらの端部分で密封した状態で接合され、リフォーマー室、伸ばされたマニホルドウェットシール構造を通る、反応ガス供給マニホルドとリフォーマー室とを連結する反応ガスと水蒸気の配管、および伸ばされたマニホルドウェットシール構造を通る、燃料ガス供給マニホルドとを連結する水素富化生成ガスの配管を囲い込み、反応ガス、水蒸気、および燃料電池のそれぞれのリフォーマー室からの生成ガスの完全な内部マニホルディングをもたらす。

【0044】支持されたニッケルのような通常のリフォーミング触媒は石炭、シェールのような天然で生じた有機炭化水素物質のガス化によって又は無気消化によって得られた天然ガス又は燃料のような炭化水素物質から水素の製造のための公知の蒸気リフォーム反応の実施のためリフォーム室内において使用できる。メタン含有ガス源は反応性炭化水素質ガスをリフォーム室に供給するために使用できる。

【0045】矢印で示されているように、炭化水素質反応ガス及び蒸気は、反応性ガスマニホルド50からリフォーム室に供給され、そのリフォーム室内のリフォーム触媒の上を通過し、燃料供給マニホルド24内に直接に通過されるその生成物ガスの水素含有を高める。この方法において、その燃料供給マニホルドを通過する燃料の水素含量はその電池の軸に沿って高められる。

【0046】本発明によって実施されるような燃料電池スタックを完全に内部マニホルドする能力は、電気化学的ユニット燃料電池を所望により冷却しながらそして高められた水素燃料をその電池スタックの軸に沿ってその燃料供給マニホルドに提供しながらそのリフォーム反応を実施するために電気化学的に発生した熱を利用するその燃料電池スタック内において、リフォーム室の散在を許容する。その燃料電池電極からそのリフォーム室の分離は、熔融炭酸塩電解質によって通常のリフォーム触媒がだめになるのが避けられる。その燃料電池スタック内の炭化水素物質のリフォームと一緒にその完全に内部マニホルドされた燃料電池セルは改良された全燃料を電気セル効率に提供する。本発明に依れば天然ガスは、上述のように各約5〜10の電気化学的ユニットセル間にリフォーム室を配置することによってその電気化学的反応の高められた水素燃料を提供するために反応体として使用できる。

【0047】リフォーム室の使用は、図2に示されるようなセパレートプレート配置に関して上記に記載されたけれども、上記に記載した方法と同様の方法でリフォーム室に連通する反応性ガスマニホルドとして内部マニホルドの或る種のものの消化によって広範囲なセパレートプレート配置に適用できる。本発明による内部リフ

ォーム室を提供する本質的な要素は、所望のように配置されそしてそのエンドプレート（end plate）を通してのみ外部供給及び排出管に接続できる内部マニホールドを通して燃料供給及び排出、オキシダント供給及び排出及び反応性ガス供給を提供する完全に内部マニホールドされた燃料電池スタックである。

【0048】電解質／電極及び／又は電流コレクターウエットシールの使用により、その燃料マニホールドとそのセパレータプレートのアノード面のみ間の及びそのオキシダントマニホールドとそのセパレータプレートの反対カソード面のみ間の連通は、外部マニホールドが使用される時本質的であるような多孔質ガスケットなしに達成できる。その主要なウエットシールはその電解質及びその電極間であるけれども、その電解質と幾分かの区域においてその電極を越えて伸びる電流コレクターと間に幾分かのウエットシールが存在していても良くそしてそのシール区域がその電極コレクター又は電極によって完全にカバーされない場合においてその電解質とそのセパレータプレートのシール区域間に幾分かのウエットシールが存在していても良い。さらにリフォーム室は上述のようにその燃料電池スタックの軸に沿って散在できる。さらに各各ガスマニホールドシール区域は、腐食性及び他の吸上作用処理を減らすためにアルミニウム化できる。

【0049】本発明の、内部が完全にマニホールド型になっている電池を使用すると、工場の組み立て場において、カーボネート・テープの溶解によって電池間の距離の変化が生じ、一旦このような溶解が起こると、電池間距離はそれ以上変化することはない。工場から搬出される電池スタックの高さは、使用場所において圧力容器の中で運転している間中同じである。改質チャンバーの高さは、始動時または燃料電池運転中に変化しない。従って、燃料電池スタック運転中には、活性部分およびシール部分において電池を支える力を維持するために必要な継続管理のみが必要である。

【0050】本発明の電池形状および電池スタックの利点を、主として熔融カーボネート電池質燃料電池に関して述べて来たが、これらは固体酸化物電解質における酸素イオン又は酸素空隙あるいはその双方の移動によって内部の電氣的条件を与える固体導電体／固体電解質燃料電池その他の高温燃料電池に容易に応用することができる。イットリウムでドーピングしたジルコニア、酸化物イオンを伝導する様々なパーブスカイト化合物、および固体陽子導電体（例えばイッテルビウムでドーピングしたバリウム燐膏）等の、多くの適当な固体酸化物電解質が知られている。本発明の燃料電池スタック形状は、特にこれらのタイプの固体導電体／固体酸化物燃料電池において有用である。

【0051】前述の明細書において本発明を一定の好ましい具体例と関連して述べ、例証のために多くの詳細を

述べて来たが、当業者には、本発明に従ってさらに具体例を追加できることが明らかだろう。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の1実施態様に従う燃料電池の周辺のウエットシール領域の側断面図である。

【図2】図2は、本発明の1実施態様に従う燃料電池スタックの単一電池ユニットの分解斜視図である。

【図3】図3は、本発明の1実施態様に従う内部リフォーミング室をもつ燃料電池スタックの一部略分解斜視図である。

【図4】本発明に従うマニホールドを十分に設けた燃料電池スタックのマニホールドプレートの別の実施態様の正面図である。

【符号の説明】

- 20 電解質
- 26 アノード
- 29 アノード集電体
- 40 セパレータプレート
- 30, 31 孔
- 28 カソード集電体
- 27 カソード

【手続補正3】

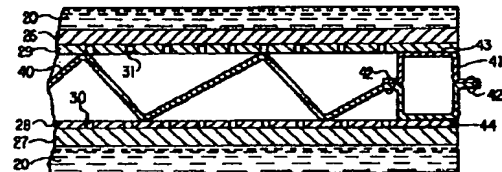
【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】全図

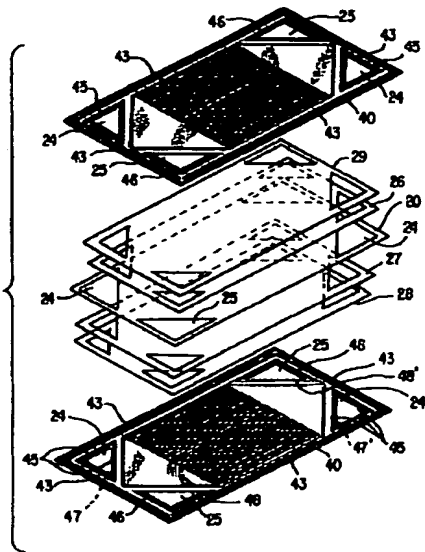
【補正方法】変更

【補正内容】

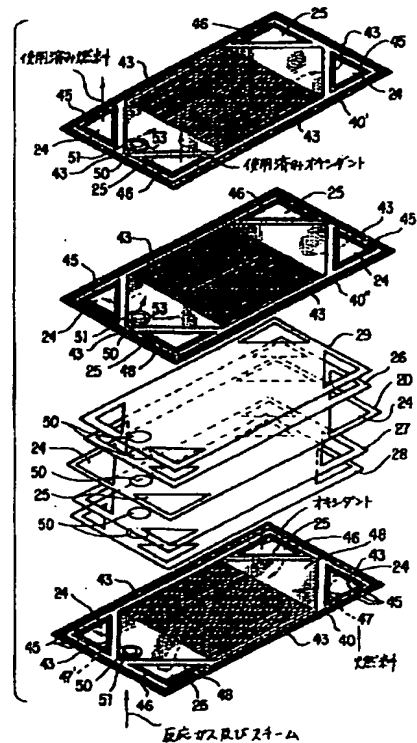
【図1】



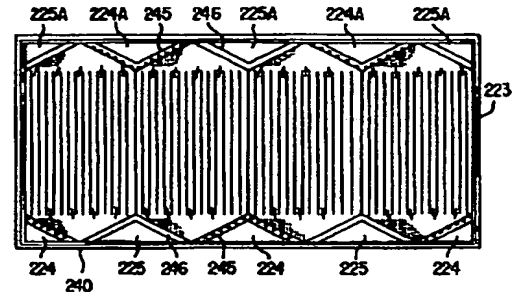
【図2】



【図3】



*【図4】



*

【手続補正書】

【提出日】平成9年10月9日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項8

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項8】 前記セパレーター及びセパレーター／リ
ホーマー板が、約0.010～約0.050インチの厚
さのプレス成型された金属プレートである請求項1に記
載の燃料電池スタック。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項9

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項9】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在周辺ウエットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、そして前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在周辺ウエットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項10

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項10】 前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在マニホールドウエットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、そして前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在マニホールドウエットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項12

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項12】 前記アノードに面した側の前記セバレーター板がニッケル及び銅より成る群から選択される1種類の金属で塗装又は被覆されている請求項1に記載の燃料電池スタック。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項16

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項16】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在周辺ウエットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在周辺ウエットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含み、前記延在マニホールドウエッ

トシール構造が、前記セバレーター板の1つの面上において前記セバレーター板の前記1つの面上の前記延在マニホールドウエットシールを成形するための前記セバレーター板のプレス成型された造形を含み、そして前記セバレーター板の他の面上において前記セバレーター板の前記他の面に固着された前記延在マニホールドウエットシールを成形しているプレス成型された板金の形状を含んで成る請求項14に記載の燃料電池スタック。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項17

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項17】 集電装置が、前記アノード及び前記カソードのうち少なくとも1つと前記セバレーター板との間にある請求項1に記載の燃料電池スタック。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項18

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項18】 複数の燃料電池単位からなり、各燃料電池単位がアノード及びカソード、そのアノードの電解質対向面と一方の側面で接しそしてそのカソードの電解質対向面と他方の側面で接している電解質、及びアノードとカソードとの間でそれらの燃料電池単位同志を分離してそのセバレーター板のアノード対向面とそのアノードとの間にアノード室を形成すると共にそのセバレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池単位のカソードのセバレーター対向面との間にカソード室を形成するセバレーター板からなり、そのアノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通しそしてそのカソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している；燃料電池スタックにおいて、それらの電解質、アノード、カソード及びセバレーター板は、燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており、セバレーター板は、それらの周囲全体にわたって各面において約1インチより少ない幅の電解質と接するように延在する平らな周辺ウエットシール構造を有して、電池の運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成し、電解質、アノード、カソード及びセバレーター板はそれぞれ複数の整列した穴を有し、セバレーター板のそれらの穴は、セバレーター板の各面において電極及び集電体の少なくとも一方の約1インチより少ない幅と接するように延在する平らなマニホールドウエットシール構造により取り囲まれて、電池運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成して、電池スタックを貫いて延在する複数のマニホールド、その延在マニホールドウエットシー

ル構造を貫通してセバレーター板の一方の面上の一組のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及びその延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセバレーター板の他方の面上の別の一組のマニホールドとカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成させ、それにより燃料電池スタック中の各単位燃料電池へのならびにそれからの燃料及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与えることからなる改良。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項20

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項20】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、燃料電池スタックは、その軸に沿って、それぞれが二つのセバレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーミング室を散在させており、それらのセバレーター／リホーマー板の一方はアノード室の一つの対面するセバレーター板のアノード対向面の形状を有し、そしてセバレーター／リホーマー板の他方がカソード室の一つに対面するセバレーター板のカソード対向面の形状を有し、上記二つのセバレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封結合してリホーマー室を封入しており、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は第3番目の組のマニホールドからリホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与え、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は燃料ガス供給マニホールドへの強化水素生成ガスの連通を与え、それにより燃料電池スタックの各リホーマー単位への反応剤ガス及び空気ならびに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホールドシステムを与える燃料電池スタック。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項24

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項24】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、該リホーマー室は、約5～約10の隣接燃料電池単位からなる群の間に散在されている燃料電池スタック。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項25

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項25】 セバレーター板が約0.010～約0.050インチの厚さの加圧金属プレートである請求項18の燃料電池スタック。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項26

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項26】 セバレーター板の1つの面上の延長したマニホールドウエットシール構造が、該セバレーター板の1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セバレーター板のプレス成型物からなり、および該セバレーター板の他の面上では、該セバレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する約0.010～約0.050インチの厚さのプレス成型シート金属成型物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項28

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項28】 上記アノードに面した側のセバレーター板がニッケルおよび銅からなる群より選択された金属で被覆または被着された請求項18の燃料電池スタック。

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項32

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項32】 セバレーター板の1つの面上の偏平な周辺のウエットシール構造が、該セバレーター板の1つの面上では、該セバレーター板の上記1つの面上に該延在した周辺のマニホールドウエットシールを形成するための該セバレーター板のプレス成型物からなり、該セバレーター板の他の面上では、該板は該セバレーターの上記他の面に固定された上記延在周辺のマニホールドウエットシールを形成するプレス成型シート金属成型物からなり、該セバレーター板の上記1つの面上の該延在マニホールドウエットシール構造は、該セバレーター板の1つの面上では、該延在マニホールドウエットシールを形成するための該セバレーター板のプレス成型物からなり、および該セバレーター板の他の面上では、該セバレーターの上記他の面に固定された上記延在マニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなる請求項30の燃料電池スタック。

【手続補正14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項34

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項34】 アノード、セバレータープレート、お

よびカソードからなる燃料電池単位用サブアセンブリーであって、

該燃料電池単位は上記アノード、カソードおよび燃料電池スタックの縁部に延在するセパレーター板を有し、該セパレーター板は、約1インチ未満の巾の、完全にそれらの周辺部全体の各面から延びる偏平な周辺のウェットシール構造を有し、上記アノード、上記カソード、および上記セパレーター板は各々多数の整列した穴を有し、該セパレーター板の穴は約1インチ未満の巾の、完全に該穴の周囲のセパレーター板の各面から延在する偏平な周辺のウェットシール構造によって囲まれており、燃料ガスを上記延在マニホールドウェットシール構造を通して上記マニホールドと上記セパレーター板の1つの面上のアノード室との間に流通させる導管およびオキシダントガスを上記延在マニホールドウェットシール構造を通してもう1組の上記マニホールドと上記セパレーター板の他の面上のカソード室との間に流通させる導管を有することによって、各シール部分で封止接合された上記燃料電池スタック、上記アノード、上記セパレーター板および上記カソードにおける各単位燃料電池に、燃料ガスとオキシダントガスを流入させかつ流出させることができるようにしたサブアセンブリー。

【手続補正15】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項36

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項36】 セパレーター板とウェットシール構造がウェットシール構造の偏平部分において厚さ約0.010-約0.050インチであり、巾約1/4-約3/4インチである請求項34のサブアセンブリー。

【手続補正16】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項37

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項37】 集電装置が上記アノードか上記カソードの少なくとも一方と上記セパレーター板との間にある請求項34のサブアセンブリー。

【手続補正17】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】請求項38

【補正方法】変更

【補正内容】

【請求項38】 集電装置が燃料電池スタックの縁部に延在している請求項37のサブアセンブリー。

【手続補正18】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0001

【補正方法】変更

【補正内容】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は内部マニホールドを有する燃料電池スタックおよび内部マニホールドを有し且つ内部リフォーム式燃料電池スタックに関し、そして特にそのためのアノード／集電体／セパレーター板／集電体／カソードからなるサブアセンブリーに関し、該サブアセンブリーは、電解質と組み合わせた時刻電解質と電極との間にウェットシールを有するものである。このサブアセンブリーは、アセンブリーに対する安全と長期安定性を提供し、そしてセパレーター板の設計は複数の内部リホーミングチャンバーを有することを可能とし、該チャンバーはアノードチャンバーと分離されてスタックの高さ方向に沿って配置されている。本発明は特に熔融炭酸塩および固形コンダクター／固形酸化物燃料電池に適用できる。

【手続補正19】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0002

【補正方法】変更

【補正内容】

【0002】

【従来の技術】一般に、燃料電池電気発生単位は、不活性なもしくは二極性の電気伝導性鉄系金属セパレーター板によって分離された各電池の複数のスタックからなっている。各電池は互いにサンドイッチ状に挟みあって固定された一つのスタック単位をなして、所望の燃料電池エネルギー発生装置を形成する。各電池は一般にアノード及びカソード電極、共通の電解質タイル、および燃料と酸化ガスの供給源を含んでいる。燃料ガスおよびオキシダントガスは双方とも、マニホールドを通して、セパレーター板と電解質タイルとの間の夫々の反応成分チャンバーに導入される。電解質と他の電池成分との接触領域は、燃料ガスとオキシダントガスの分離を維持しそしてガス漏れを防止および／または最小限にするため、ウェットシールとして知られている。初期の燃料電池の欠陥に関与する主な要因は、ウェットシール領域の腐食と疲弊である。この欠陥は、高温の腐食性電解質の接触および電池の熱サイクルの間の温度の大幅な変動に起因する高度な熱ストレスにより加速され、結晶内および結晶間クラッキングによる構造の脆弱化を招来する。このような欠陥は望ましからぬ燃料ガスおよび／またはオキシダントガスの混合および系外へのガス漏れを引き起こし、意図する酸化還元反応を阻害して、電池の電流発生の低下および最終的停止を生じる。約500ないし700℃の範囲の燃料電池運転条件においては、熔融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料電池のハウジングとしておよびセパレーター板として必要な鉄系金属に対して非常に腐食性である。熔融炭酸塩燃料電池スタックの高温運転は、ウェットシール領域における腐食と熱ストレ

スの問題を増大し、このことは隣りあう材料の熱膨張係数が異なる場合に特に顕著である。

【手続補正20】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0003

【補正方法】変更

【補正内容】

【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、組み立てたスタックの各電池へ出入りする燃料ガスおよびオキシダントガスのための、電池成分の設計により組み立ての容易さ、長期耐久性および燃料電池運転の安定性を提供する様式で、完全に内部化したマニホールドを提供する。本発明はまた、リホーミング触媒の疲弊なしに行なえる炭化水素含有燃料の内部電池リホーミングのための、独立したリホーミングチャンバーのための内部マニホールドを提供することもできる。リホーム用メタンが酸化炭素と水素に変化する吸熱反応が、電池スタック内で有利に行われる。

【手続補正21】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0004

【補正方法】変更

【補正内容】

【0004】商業的に実行できるカーボネート燃料電池のスタックは、各々8フィート四方の平面積を有する約600以上の電池を含んでよい。このような個々の電池のスタックにおいて、セパレーター板は、各々が1セットのセパレーター板の間に入れられた燃料及びオキシダントから個々の電池を分離し、燃料はセパレーター板の1面と電解質マトリックスのアノード側との間に入れられ、オキシダントはセパレーター板の他方の面と二次電解質マトリックスのカソード側との間に入れられる。

【手続補正22】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0005

【補正方法】変更

【補正内容】

【0005】燃料電池の開発において強調されてきたことは、燃料電池スタックから物理的に分離可能なチャンネルマニフォールドを使用することにより、燃料とオキシダントガスを外部マニフォールディングすることである。しかしながら、各電池の入力及び出力はそれぞれの入力マニフォールド及び出力マニフォールドに開かれていなければならない、入力マニフォールド及び出力マニフォールドは電池スタックの外面上にクランプされていなければならない。電気的なショートを避けるために、金属マニフォールドと現地スタックとの間を絶縁しなければならない。外部マニフォールディングには、電池スタックの電位傾斜に沿ってガスケット内で

【手続補正23】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正内容】

【0016】

【発明の要約】本発明は、完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供し、特に、高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適する。本発明の完全に内部的にマニホールドされた燃料電池は、平面構成要素を有する任意の電池、特に例えば熔融カーボネートおよび固体導体/固体酸化物燃料電池のような高温燃料電池に適する。一般的には複数の燃料電池単位の長方形燃料電池スタックが作られ、各燃料電池単位はアノードおよびカソード、アノードの片側上に接しおよびカソードの反対側上に接する電解質、ならびにひとつの電池のアノードと隣接する電池のカソードとの間の電池単位を分離してセパレーター板の片側とアノードの間にアノード容器を形成し、およびセパレーター板の反対側とカソードとの間のカソード容器を分離するセパレーター板から成る。この燃料電池単位はスタックされ、セパレーター板と同様な内部構造を有する末端板が提供され各端部に半分の電池を形成し、燃料電池スタックに強固な構造を与えるためにクランプ止めされる。本発明の燃料電池スタックでは、電解質、電極、集電装置およびセパレーター板は約同様の外寸を有することができ、燃料電池スタックの端の領域に伸びることができる。セパレーター板は、平坦な末端シール構造を有し、これはセパレーター板の平面から伸びて各セパレーター板のフェイス上の集電装置および/または電極に、それらの末端の回りに完全に接触して末端シールを形成する。アノード、アノード集電装置、セパレーター板、カソード集電装置およびカソードのサブアセンブリーは、制御された条件で組み立てられることができ、つぎにこのようなサブアセンブリーは電池スタックを作るときに電解質および電解質マトリックス部分と組合わされる。

【手続補正24】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0018

【補正方法】変更

【補正内容】

【0018】電解質、電極、集電装置およびセパレーター板が、一直線に並ぶ多数の穴を所望の位置に有している。各セパレーター板の穴は偏平なマニホールド・シール構造によって囲まれており、そしてそれは、セパレーター板の面から該セパレーター板の各面上の集電装置および/または電極に接触するまで延びていて、セパレーター板/集電装置および/または電極シールを形成し、それが各穴を囲んで各穴を通してガス・マニホールドを形成し、そして電極スタックを通して延びている。延びたマ

ニホールド・シール構造を通じて導管または穴は、燃料マニホールドとセパレーター板の一面にあるアノード室との間にガス整流を供給し、そして、延びたマニホールド・シール構造を通じて導管または穴は、オキシダント・マニホールドとセパレーター板の反対面上にあるカソード室との間のガス伝達を可能にする。この構造により、燃料電池スタックにおける単位燃料電池の各々へ、および各々から、燃料およびオキシダント・ガスの内部マニホールディングが十分与えられる。同様に、炭化水素反応ガスおよび蒸気が燃料電池スタックを通じて散在するリホーミング室へ供給されるだろうし、そして、水素濃縮改質生成ガスが各リホーミング室から燃料マニホールドへ送られ、下流のアノード室へ供給される。

【手続補正25】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正内容】

【0019】スタック末端プレートは、それらの内面上のセパレーター板と同様にして配設され、該燃料電池スタックの組の各々に供給し排出する手段が備えられている。末端のプレートの接続部分（コネクション）におけるマニホールドの適当な組へ、および組から、燃料ガス、オキシダント・ガスおよび炭化水素反応ガスを供給し排出する外部手段は、いかなる従来技術手段によって備えてもよい。ここで「マニホールドの組」というのは、1またはそれ以上の燃料入口を形成する第1の組、1またはそれ以上の使用済の燃料排出口である第2の組、1またはそれ以上のオキシダント入口である第3の組、1またはそれ以上の使用済のオキシダント排出口である第4の組、そして1またはそれ以上の反応ガス入口の第5の組をいう。セパレーター板、集電装置、電極および電解質を通じて形成されている穴は、丸、正方形、長方形、三角形、また他のどんな所望の形や大きさであってもよい。そのような穴の各々は単一の穴として述べられているが、所望のガス分配を供給するには困難を生じるだろう。電池の活性領域の向こう側に所望のガス流量とパターンを供給するために、所望に応じて、電池構成要素を通して、任意の数のマニホールドを備えてよい。本発明では、少なくとも約0.25インチ離れた隣合うマニホールドのエッジ（縁）を有する各マニホールドで囲まれたセパレーター板と集電装置および／または電極との間に直接シールを備えることが重要である。本発明はまた、セパレーター板と集電装置および／または内部マニホールドの領域の外部にある電極との間に直接、連続する周辺シールを備える。

【手続補正26】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正内容】

【0020】一つの好ましい実施例においては、本発明に係るセパレーター板はプレス成型した薄い金属板であって、燃料電池の全作用領域に波状の部分および／又はくぼみが設けられていて、一つの面上に全周縁部と、分離板の反対側の面に溶接された薄い金属の直立したシール構造を有するマニホールドシール構造とが、プレス成形によって形成されており、それによってセパレーター板と、セパレーター板の対抗する両面上の集電体または電極との間に、全周縁部とマニホールドシールが設けられている。例えば棒状または帯板状の、粉末冶金法および類似の方法によって形成される延在するシール領域を設けるために、どのような構造を用いてもよい。一方の側にアノード集電体および／又はアノードがあり、反対側にカソード集電体および／又はカソードがあるセパレーター板の半組み立て品は、マニホールドと周縁のシール構造の領域内で金属製の要素を溶接またはろう接することによって製造することができる。

【手続補正27】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0024

【補正方法】変更

【補正内容】

【0024】本発明は燃料電池要素、特にセパレーター板のサブアセンブリー、アノード集電体および／又はアノード、およびカソード集電体および／又はカソードの、大量生産可能な形状を与え、また制御された条件下で実際の費用で製作できる。本発明のサブアセンブリーの使用によって、燃料電池スタックの組み立てが容易になり、また、様々なサイズの燃料電池スタックのモジュール化が可能となる。

【手続補正28】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0026

【補正方法】変更

【補正内容】

【0026】本発明の好ましい実施態様においては、燃料とオキシダントは完全内部マニホールド燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/505,293号に記載されるように流す。同様に、燃料、オキシダント、反応ガスおよび蒸気を完全内部マニホールドと内部改造燃料セルスタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/517,227号に記載されるように流す。これらの米国特許出願全体は本明細書の一部として引用する。また、これらの先行出願には、所望の完全内部燃料、オキシダント、反応物と蒸気および排出マニホールドと連動させて、一般に防流体性のアノード、カソードおよびリホーミング室を提供する電解液と接触するように延在する周辺ウェットシール構造と直立マニホールドウェットシール構造によって形成

される電解液とセパレーター板の間のウェットシールしたセパレーター板中のくぼみに取り付けられた集電部と電極からなる発明の実施態様がより詳細に記載されている。この出願により詳細に記載されている態様は、セパレーター板の周辺部に延在する集電部と電極からなっており、これによって製造許容範囲が広がり、セパレータープレート、集電部と電極のサブアセンブリーをより実際のものにしていく。この出願により詳細に記載されている態様においては、ウェットシールは、周辺シール部と各内部マニホールドを囲むシール部分の、電解液と集電部および／または電極間にある。

【手続補正29】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0027

【補正方法】変更

【補正内容】

【0027】本発明は、完全内部マニホールド燃料電池スタックに関するものである。好ましい実施態様においては、電解液タイル、電極、集電部およびセパレーター板はそれぞれ配列したマニホールドダクトによって透過されている。これらの要素は皆ほぼ同じ大きさの、セル周辺がその近辺にまで伸長する集電部と電極である。これらの態様によって、セパレーター板のくぼみ内に電極と集電部を密にフィットさせることが要求される強い許容性の問題を解決している。これらの態様はまた、アノード／集電部／セパレーター板／集電部／カソード集積単位のサブアセンブリーをより簡単かつ実用的にしている。これらの要素のプレアセンブリーは、あらかじめ構成したサブアセンブリーと電解質へのスタック要素の数をかなり少なくすることによって燃料電池スタックのアセンブリー作業をかなり促進している。本発明では、セパレーター板の一面から伸長する圧縮シール部とセパレーター板の反対面から伸長する薄いシートフォームを有する薄いシートセパレーター板を用いて、マニホールドと周辺シール部を形成するのが好ましい。この薄いシートシール部はわずかな柔軟性及び弾性で密閉を可能とするものである。

【手続補正30】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0028

【補正方法】変更

【補正内容】

【0028】本発明の燃料電池スタックは、本明細書の一部として引用される上記の先行出願により詳細に記載されるように、燃料とオキシダントガスを電池スタックの十分に内部に流す。先行出願に記載されるように、セルセパレーター板とともに電池のエッジに伸長する電極の角の部分にマニホールドホールを設けてもよい。電極の周辺部の回りにあるそれぞれの面上にある通常のウェットシールを形成する各面上のセパレーター板と電解質

間の接触によって、液体を封じ込めている。マニホールドホールとアノードとカソード区画の間の液体流通を可能にする所望のオープニングを通して、電解質とセパレーター板の間の通常のウェットシールでマニホールドホールをシーリングしながら所望のガス流通を行なってもよい。この出願により詳細に記載される態様は、セパレーター板の周辺部に伸長する集電部と電極を有し、集電部と電極のマニホールドホールをマッチングさせることを要し、従来法として記載される態様におけるように電解質とセパレーター板との間ではなくて電解質と電極との間のウェットシールを行う。

【手続補正31】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0029

【補正方法】変更

【補正内容】

【0029】セパレーター板、電解質タイル、電極及び集電体における調和マニホールド孔は、ガスの供給及び排出用の燃料電池スタックの全高さにわたって連続しているマニホールド導管を形成する。本発明は、燃料電池スタック中の全電池へ内部的に伸びているマニホールド導管が単一の外部開口から供給されるものであり、一方従来の外部的にマニホールドされた燃料電池スタックは、各独立した燃料電池へ向かって又はそれからの外部開口を必要としていた。ガスは、1つの半電池として作動する端板を通して燃料電池スタックへ供給され、そして他の半電池として作動する同様の端板を通して排出される。

【手続補正32】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0030

【補正方法】変更

【補正内容】

【0030】流体が燃料電池スタックへ供給され、又それから取り出される方法は、広範囲のバリエーションにおいて行われる。ガスシーリングは、各個の電池内及び燃料電池スタックに散在するリフォーミング室内の望ましい位置にガスを導入するのに適するように、セパレーター板周辺と各ガスマニホールド領域との両方において、電解質タイルと電極との間のシーリングにより通常の方法で、達成される。ウェットシールは、分離プレートの両側上にある類似の直立シール構造物によって、これらの領域に形成される。

【手続補正33】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0031

【補正方法】変更

【補正内容】

【0031】各先願の図1に示されるように、電解質20及びセパレーター板40は電池の外側端まで延びて、

ウェットシール領域23における周囲のあたりでお互いにシールされている。独立した熔融炭酸塩燃料電池単位はアノード26とともに示されており、そのアノードはセパレーター板40の一面から離れており、矢印38によって示されているように燃料マニホールド孔24により供給されるアノード室を形成する。セパレーター板40の他面には、カソード27がセパレーター板40から離れて設けられ、矢印39により示されるようにオキシダントマニホールド孔25と連結してカソード室を形成する。電解質20及びセパレーター板40は、周辺ウェットシール領域23を形成する電池の外端まで延び、その領域が電解質と流体封じ込め用のセパレーター板との間の周辺ウェットシールを形成する。燃料マニホールドウェットシール領域45及びオキシダントウェットシール領域46は、電解質／セパレーター板ウェットシールによりマニホールドシーリングを形成し、セパレーター板40の反対側にあるアノード及びカソード室への流体の望ましい導入を行う。如何なる追加のガスケットもシーリングのために使用されず、又この電池単位は炭酸塩テープも包含する広範囲な種類の炭酸塩添加技術に適用することができる。

【手続補正34】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0032

【補正方法】変更

【補正内容】

【0032】本願の図1（正確な縮尺率で書かれていない）は、本発明の一つの態様に従った周辺シール部分の詳細を示すものであり、薄いシート状セパレーター板40は、穴30を有するカソード27の集電装置28に隣接して波形の一面上にピークをもつ波形にされており、該電池のカソード面上にカソード集電装置28に隣接して置かれている。平らな薄いシートのセパレーター板周辺シール部分44をもつように形成されている。薄い金属ストリップ材から形成されたセパレーター板シールストリップ41は、溶接点42で溶接されているか、もしくはセパレーター板40のアノードに付設させて、該電池のアノード側に穴31を有するアノード26の集電装置26に隣接して設置されている平らなセパレーター板シールストリップ周辺シール部分43を与える。

【手続補正35】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0033

【補正方法】変更

【補正内容】

【0033】セパレーター板及びシールストリップの位置は、逆にされても良く、セパレーターシールストリップシール部分43とセパレーターシール部分44の間隔は、個々の電池の必要とする間隔に合うように形成されることは、極めて明らかである。該電池の構成部材の各

々は、ほぼ該電池の周辺に伸びているが、セパレーター板の立上り部分により形成されるウェットシール部分において電解質と電極及び／又は集電装置との間のウェットシールを形成するシール部分43と44の十分な重複がある限り、ここでは寸法は臨界的ではない。類似のウェットシールは、セパレーター板の各々の側で類似の立上りシール構造により、各々のマニホールドの周囲に形成される。電池操作条件下で電極を通る電解質の漏れを防止するために、ウェットシールの部分において、多孔性電極は、ろう付材の如き、高融点材料で充填される。電池スタックが共にしっかり締められる時、セパレーター板の周辺の周囲と内部マニホールドの各々の周囲のセパレーター板の両面に、立上りウェットシール部分からの圧により、ウェットシールが形成される。

【手続補正36】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0034

【補正方法】変更

【補正内容】

【0034】我々は、広いウェットシール部分機能よりも、狭いウェットシール部分機能が良いことを見出した。立上りウェットシール部分は、セパレーター板と同じ薄い材料、約0.010-0.050インチ、好ましくは約0.015-0.025インチで構成されることが望ましい。又、漏れの原因となるたるみや曲がりやすさを避けるために、約1インチより小さい幅に限定することを見出した。立上りウェットシール構造物の幅は、好ましくは約0.25-0.75インチで、内部ブリッジや支持の必要性をなくせる。さらに、我々は、幅1インチ以下のウェットシールは、電解質マトリックスにおける良好な炭酸塩電解質保持をさせる電池昇温間に、グリーン電解質マトリックステープから有機質バインダーの、必要な十分な除去を与えることを見出した。約1インチを超えるウェットシール幅は、電池操作間に漏れがちなウェットシールに導く、残留する炭素質材料の少量の炭酸塩電解質が存在することになる。再び、追付のガスケットはシールのために用いられることはなく、又該電池単位は炭酸塩テープの使用を含め、追加の炭酸塩技術の広い変化に適用できる。

【手続補正37】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0035

【補正方法】変更

【補正内容】

【0035】炭酸塩テープを用いるときには、炭酸塩テープ及び電解質マトリックスは、電池エッジに向けて伸びている。そして、電池間の間隙は、炭酸塩テープが溶融すると、該炭酸塩テープの厚さに比例して減少するが、シーリングとセルコンポーネント全体の組み立ては常時維持される。炭酸塩テープが溶融する前に電池をヒ

ートアップする間、マニホールドホール24及び25のそれぞれのまわりは、シール状態が維持される。この理由は、炭酸塩テープ及び電解質マトリックス、例えばLiAlO₃が、隣接するシール面に向かっており、しかも、ゴム状のバインダーを含有しているからである。バインダーが燃え尽きる間、ガスの流れは維持され、そしてシールが得られる。なお、バインダーが燃え尽きるのは、炭酸塩が溶融する前である。バインダーが燃え尽きて、電池の温度が上昇して炭酸塩の融点になるとき、溶融炭酸塩は多孔質LiAlO₃、テープ及び電極に吸収される。電池間の間隙は、炭酸塩テープが溶融してその間隔が減少するが、室温から作動温度である約650℃までシールは保持される。シール部分にある薄い金属シートが有する、制限された柔軟性と捩り性によって、セルのシールは更に確実となる。

【手続補正38】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0036

【補正方法】変更

【補正内容】

【0036】図2は、本発明の一態様に従う溶融炭酸塩燃料電池スタックの燃料電池単位の斜視分解図である。図2において、40はセパレーター板、27はカソード、28はカソード集電体、20は電解質、26はアノード、29はアノード集電体である。セパレーター板40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20は、セルの周辺部分にまで伸びており、セパレーター板40の両面においてウェットシールを形成する。つまり、電解質20とカソード27及び／又は集電体28との間、そして、電解質20と、アノード26及び集電体29との間において、ウェットの周縁部全体にわたってウェットシール43が形成される。周縁部のウェットシール構造43は、セパレーター板40の面から上方及び下方に伸びている。その結果、セパレーター板40の両面は、集電体及び／又は電極の周縁部と接触することになる。セパレーター板40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20には、それぞれ、対応する位置に燃料用マニホールドホール24とオキシダント用マニホールドホール25が設けられている。それぞれのマニホールドホールは、一方が供給用のホールであり、他方が排気用のホールである。図2に示すように、マニホールドホールは、好ましくは三角形をしている。これは薄いシートから容易にマニホールドシール領域を形成できるからである。しかしながら、マニホールドホールは、円形や矩形その他の形状でもよい。図2に示すマニホールドホールは一つの開口部となっているが、例えば、電池の反応室中を流れるガス流を制御するために開口部にパーティションを設けてもよい。燃料用マニホールドウェットシール領域45及びオキシダント用マニホールドウェットシール領域46

は、セパレーター板40の上方及び下方に向かって伸びている。その結果、セパレーター板40の両面において、集電体及び／又は電極と接触することになり、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極との間でウェットシールを形成する。なお、周縁部のウェットシールの場合と同様に、電解質とそれに隣接する集電体及び／又は電極はガス導管を形成する。

【手続補正39】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0037

【補正方法】変更

【補正内容】

【0037】図2に一番よく表されている通り、オキシダントマニホールド孔25はオキシダント流れをカソード室（示されている通りセパレーター板の上面に隣接している）にのみ及びオキシダント流れをカソード室から提供するオキシダントマニホールドウェットシール46によってシールされる。このカソード室はオキシダント供給開口48及びオキシダント排出開口48'の近くにあり、このシール46はガスがアノード室に又はアノード室から流れるのを回避している。一方、燃料マニホールド孔24は燃料マニホールドウェットシール45でシールされ、このシール45は燃料流れをアノード室（示されている通りセパレーター板の下面面に隣接する）のみに流し、及びアノード室から流し、このアノード室は燃料供給開口47及び燃料排出開口47'の近くにあり、このシール45はガス流れがカソード室に又はカソード室から流れるのを回避している。マニホールドウェットシールはストレートプレスされたシール金属構造として示されるが、それらはガス流れを回避するためにあらゆる望ましい形又は構造をとることができる。このマニホールドウェットシールは燃料マニホールド孔24とオキシダントマニホールド孔25の間に二重のウェットシールを形成する。

【手続補正40】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0038

【補正方法】変更

【補正内容】

【0038】セパレーター板40は望ましい物理的強度及びガス分離を提供する適当な物質からなってもよい。このセパレーター板は望ましくは非常に薄く、約0.010～0.050インチの厚さであり、好ましくは、約0.015～0.025インチの厚さである。多くの電池スタックでは、バイメタルのセパレーター板を使用することが好ましく、第一鉄金属腐食を避けるため、カソード面にステンレス鋼をアノード面にニッケル又は銅を使用できる。このニッケル又は銅はセパレーター板の厚さの10%をクラッドし、積層し又はめっきである。セパレーター板はタイプ300シリーズのステンレス鋼の

ような第一鉄合金から二次加工もまたできる。このセバレーター板はガス室非反応性セバレーターを提供することと内部負荷支持部材としての燃料電池への構造的強度を提供することとの二つの機能を提供する。電極に隣接してガス的好循環及び強度の両方をするために活性面積内の波形及び／又はえくぼを有する横断面形有するセバレーター板を使用することが好ましいが、本発明の原理は、周囲のシール域を提供し、内部マニホールド孔の周りにシールを提供すると同時に燃料電池操作で要求されるようにガスを内部マニホールドへ通し、及び内部マニホールドからガスを通す構造の水平なセバレーター板にもまた適用できる。

【手続補正41】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0039

【補正方法】変更

【補正内容】

【0039】薄くスタンプされたスタンプ鋼板は、American Heat Reclaiming Corp. (1270 Avenue New York 10020, NY) による刊行物 "Modern Designs For Effective Heat Transfer" 及びTranter Inc. (Wichita Falls, Texas 76307) による "Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger" で示される熱交換技術に利用されている。これらの熱交換器は一連のエンボスされたガスケット又は板の一面上の熱媒体の通路用の溝を提供する末端フレーム及び板の他の面上の冷媒体の通路の間で一緒にボルト締めされたプレスされた金属板を使用する。しかしながら、燃料電池スタックのセバレーター板は非常に異なる問題、シーリング及び熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池操作条件下における腐食の問題、異なるマニホールド配置、シーリング及び流体連通手段の問題（二つの流体は分離した関係で隣接するセバレーターの間を通過しなければならないので）を提供している。熱交換では、ひとつのみの流体が隣接する熱交換板の間を通過する。しかしながら、本発明のこの燃料電池スタックの電極を流れる流体流れの技術はデザイン技術及び渦巻き模様、洗濯板、直線波形及び混合波形のような熱交換器の原型を有利に利用できる。

【手続補正42】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0040

【補正方法】変更

【補正内容】

【0040】我々のセバレーター板の両側における同方向の流れ及び対向方向の流れに関する先行出願においてより詳細に記述され且つ示されている本発明のセバレー

ター板の実施態様に加えて、図4に本発明に有用な別のセバレーター板が示されている。図4に示されているセバレーター板には4つの同様な繰返し域が設けられており、商業的に実施可能な最大面積の単位、例えば10,000 cm² すなわち約34×57 in² 程度の単位とするときには望ましいガス流を提供できる。図4にはセバレーター板240が示されている。このとき、燃料供給用のマニフォールド型孔224から燃料は矢印で示されているようにアノード室を通過し活性領域を横断して燃料の欠乏したマニフォールド型孔224Aに向かう。オキシダントはオキシダント供給用マニフォールド型孔225を通過してセバレーター板240の反対側に供給され、そして、カソード室を通過しオキシダントの欠乏したマニフォールド型孔225Aに向かう。電解質と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール246はマニフォールド型孔を封止しており、その結果として流体の漏れが防止される。同様にして、電解質と対応するアノード若しくはカソード及び／又はその集電装置との間でウェットシール223はセルの全周を封止している。図4では、本発明に係わる大規模な燃料電池のスタック用に適している集電装置の1つの形状が示されている。なお、その他の多くの形状も同様に適していることは理解されたい。

【手続補正43】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0041

【補正方法】変更

【補正内容】

【0041】図3には、図2に示された単位電池を備えた燃料電池のスタックの実施態様の1つが示されている。ここでは、燃料電池の軸方向に沿って内部に分散させるのに適当なリフォーミング室が備えられている。リフォーミング室は、アノードセバレーター／リフォーマー板40'とカソードセバレーター／リフォーマー板40との間に設けられる。セバレーター板40、カソード27、カソード集電体28、電解質20、アノード26及びアノード集電体29は図2に関して説明されたものと類似しているが、反応ガス用マニフォールド型孔50に関しては異なっている。反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51は、セバレーター板40の一般的な(general)平から両方の面上に伸びており接触して電解質20と隣接する電極との間でウェットシールを形成せしめ、反応ガス用のマニフォールド型孔の境界を定めている。オキシダント及び燃料用のマニフォールドに関してはこのことは既述されている。反応ガス用マニフォールド型孔50の直径は電池のそれぞれの部品のものと同じであり、反応ガスのマニフォールド型ウェットシール領域51の平らな面が一方の側で電解質20とカソード27及び／又はカソード集電体28との間で接触をし、且つ、電解質20とアノード26及び／又

はアノード集電体29との間で接触をし、反応ガスのマニフォルドを囲うウェットシールを形成する。セパレーター板中において延在している反応ガス用マニフォルドウェットシール領域の側面は固体であり、それ故、反応ガスのアノード室又はカソード室の流入が阻止される。アノードセパレーター／リフォーマー板40''は、セパレーター板40中にあるオキシダント供給開口48及びオキシダント欠乏開口48'とが含まれず、且つ、その結果として、アノードセパレーター／リフォーマー板40''の上面に近接したリフォーマー室はいずれのオキシダントマニフォルドとも連通していないという点においてのみセパレーター板40と異なる。延在している反応ガスのマニフォルドウェットシール領域51の側面における反応ガス開口53は、反応ガスのマニフォルド50とリフォーマー室とを連通させる。同様にして、カソードセパレーター／リフォーマー板40'の下側は、延在している使用済燃料用マニフォルド型ウェットシール領域45の固体側面を備えるように改変して、古い燃料マニフォルド24とリフォーマー室との間をブロック連通させる。このとき、使用済燃料用マニフォルド24は備えられていない。反応ガス供給用開口53は、反応ガスマニフォルド50とアノードセパレーター／リフォーマー板40''とカソードセパレーター／リフォーマー板40'との間に形成されているリフォーマー室との間を連通させる。標準的なセパレーター板40'にこれらの改変を加えて、完全に内部がマニフォルド型になっている反応ガス部及び流れ供給部を備えたリフォーミング反応室は、燃料電池のスタック内に望ましい間隔を置いて点在させてもよい。既に詳述したのと同様に、セパレーター／リフォーマー板を前以て組み立てて、対応する電極及び集電装置を備えたセパレーター／リフォーマー板のサブアセンブリを形成してもよい。

【手続補正44】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0042

【補正方法】変更

【補正内容】

【0042】燃料電池スタックが組み込まれた時、周囲のウェットシール領域とアノードセパレーター／リフォーマー板40''のすべてのウェットシール領域はカソードセパレーター／リフォーマー板40'から伸びる対応するウェットシール領域と接触し、強固な金属／金属シールを形成し、このシールはウェットシール領域での限られた柔軟性と弾性のために、マニフォルドを板40''と40'の間の空間により形成されるリフォーマー室から効果的にシールする。所望の場合には、リフォーマー室を形成する延在ウェットシール領域をさらにセパレーター板40上まで伸ばし、セパレーター／リフォーマー板の間の空間をより大きくし、リフォーマー室の体積を

より大きくすることができる。所望の場合にリフォーマー室の体積を大きくするもうひとつの方法は、横壁を溶接によりマニフォルドウェットシール領域と周囲のウェットシール領域のそれぞれまで伸ばすことであり、そのようなセパレーター／リフォーマー板までの延長によりリフォーマー室の深さを所望の深さにでき、一方、リフォーマー室の締切りとリフォーマー室を通る所望のマニフォルドのシールされた通路を与える。リフォーマー室が上記のように補足的に深くされた場合、金属製導電性ビラーをセパレーター／リフォーマー板の間の所望の位置に設けることができ、リフォーマー室構造に弾性を付与し、導電性を付与することができる。同様な方法で、対応する集電体と電極を含む全体のリフォーマー室構造が、燃料電池スタックの組み立ての前にあらかじめ組み込まれることができる。

【手続補正45】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0044

【補正方法】変更

【補正内容】

【0044】支持されたニッケルのような通常のリフォーミング触媒は石炭、シェールのような天然の有機炭化水素物質のガス化によって又は嫌気消化によって得られた天然ガス又は燃料のような炭化水素物質から水素の製造のための公知の蒸気リフォーム反応の実施のためリフォーム室内において使用できる。メタン含有ガス源は反応用炭化水素質ガスをリフォーム室に供給するために使用できる。

【手続補正46】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0045

【補正方法】変更

【補正内容】

【0045】矢印で示されているように、炭化水素質反応ガス及び蒸気は、反応用ガスマニフォルド50からリフォーム室に供給され、そのリフォーム室内のリフォーム触媒の上を通過し、燃料供給マニフォルド24内に直接に通過されるその生成物ガスの水素含量を高める。この方法において、その燃料供給マニフォルドを通過する燃料の水素含量はその電池の軸に沿って高められる。

【手続補正47】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0046

【補正方法】変更

【補正内容】

【0046】本発明によって実施されるような燃料電池スタックを完全に内部マニフォルドする能力は、電気化学的単位燃料電池を所望により冷却しながらそして高濃度水素燃料をその電池スタックの軸に沿ってその燃料供給マニフォルドに提供しながらそのリフォーム反応を実

施するために電気化学的に発生した熱を利用するその燃料電池スタック内において、リフォーム室の散在を許容する。その燃料電池電極からそのリフォーム室の分離は、熔融炭酸塩電解質によって通常のリフォーム触媒がだめになるのが避けられる。その燃料電池スタック内の炭化水素物質のリフォームと一緒にその完全に内部マニホールドされた燃料電池セルは改良された全燃料を電気セル効率に提供する。本発明に依れば天然ガスは、上述のように各約5～10の電気化学的単位電池間にリフォーム室を配置することによってその電気化学的反応用の高められた水素燃料を提供するために反応体として使用できる。

【手続補正48】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0047

【補正方法】変更

【補正内容】

【0047】リフォーム室の使用は、図2に示されるようなセパレーター板の形状に関して上記に記載されたけれども、上記に記載した方法と同様の方法でリフォーム室に連通する反応用ガスマニホールドとして内部マニホールドの或るものを指定することによって多様なセパレーター板の形状に適用できる。本発明による内部リフォーム室を提供する本質的な要素は、所望のように配置されそしてその端板(end plate)を通してのみ外部供給及び排出管に接続できる内部マニホールドを通して燃料供給及び排出、オキシダント供給及び排出及び反応用ガス供給を提供する完全に内部マニホールドされた燃料電池スタックである。

【手続補正49】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0048

【補正方法】変更

【補正内容】

【0048】電解質／電極及び／又は集電体ウェットシールの使用により、その燃料マニホールドとそのセパレーター板のアノード面のみ間の及びそのオキシダントマニホールドとそのセパレーター板の反対カソード面のみ間の連通は、外部マニホールドが使用される時本質的であるような多孔質ガasketなしに達成できる。その主要なウェットシールはその電解質及びその電極間であるけれども、その電解質と幾分かの区域においてその電極を超えて伸びる集電体と間に幾分かのウェットシールが存在していても良くそしてそのシール区域がその電極コレクター又は電極によって完全にカバーされない場合においてその電解質とそのセパレーター板のシール区域間

に幾分かのウェットシールが存在していても良い。さらにリフォーム室は上述のようにその燃料電池スタックの軸に沿って散在できる。さらに各ガスマニホールドシール区域は、腐食性及び他の吸上作用処理を減ずるためにアルミニウム化できる。

【手続補正50】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0049

【補正方法】変更

【補正内容】

【0049】本発明の、内部が完全にマニホールド型になっている電池を使用すると、工場の組み立て場において、カーボネート・テープの溶融によって電池間の距離の変化が生じ、一旦このような溶融が起こると、電池間距離はそれ以上変化することはない。工場から搬出される電池スタックの高さは、使用場所において圧力容器の中で運転している間中同じである。リホーム室の高さは、始動時または燃料電池運転中に変化しない。従って、燃料電池スタック運転中には、活性部分およびシール部分において電池を支える力を維持するために必要な継続管理のみが必要である。

【手続補正51】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】図面の簡単な説明

【補正方法】変更

【補正内容】

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の1実施態様に従う燃料電池の周辺のウェットシール領域の側断面図である。

【図2】図2は、本発明の1実施態様に従う燃料電池スタックの単一の電池単位の分解斜視図である。

【図3】図3は、本発明の1実施態様に従う内部リフォーミング室をもつ燃料電池スタックの一部略分解斜視図である。

【図4】本発明に従うマニホールドを十分に設けた燃料電池スタックのマニホールド板の別の実施態様の正面図である。

【符号の説明】

20	電解質
26	アノード
29	アノード集電体
40	セパレーター板
30, 31	穴
28	カソード集電体
27	カソード

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.